

**Family list**13 family members for: **JP2005514754T**

Derived from 10 applications

- 1 WHITE LIGHT EMITTING OLEDs FROM COMBINED MONOMER AND AGGREGATE EMISSION**  
**Inventor:** THOMPSON MARK E; BROOKS JASON; (+3) **Applicant:** UNIV PRINCETON; UNIV SOUTHERN CALIFORNIA  
**EC:** H01L51/50E8; H01L51/00M6H; (+1) **IPC:** C09K11/06; H01L51/30; H01L51/50 (+7)  
**Publication info:** **AU2002367414 A1** - 2003-07-24
- 2 White light emitting oleds from combined monomer and aggregate emission**  
**Inventor:** THOMPSON MARK E (US); JASON BROOKS (US); (+3) **Applicant:** UNIV PRINCETON (US)  
**EC:** H01L51/50E8; H01L51/00M6H; (+1) **IPC:** C09K11/06; H01L51/30; H01L51/50 (+7)  
**Publication info:** **CN1656853 A** - 2005-08-17
- 3 WHITE LIGHT EMITTING OLEDs FROM COMBINED MONOMER AND AGGREGATE EMISSION**  
**Inventor:** THOMPSON MARK E (US); BROOKS JASON (US); (+3) **Applicant:** UNIV PRINCETON (US); UNIV SOUTHERN CALIFORNIA (US)  
**EC:** H01L51/50E8; H01L51/00M6H; (+1) **IPC:** C09K11/06; H01L51/30; H01L51/50 (+7)  
**Publication info:** **EP1472908 A1** - 2004-11-03
- 4 WHITE LIGHT EMITTING OLEDs FROM COMBINED MONOMER AND AGGREGATE EMISSION**  
**Inventor:** **Applicant:**  
**EC:** H01L51/50E8; H01L51/00M6H; (+1) **IPC:** C09K11/06; H01L51/30; H01L51/50 (+7)  
**Publication info:** **JP2005514754T T** - 2005-05-19
- 5 White light emitting OLEDs from combined monomer and aggregate emission**  
**Inventor:** FORREST STEPHEN R (US); D ANDRADE BRIAN (US); (+3) **Applicant:** UNIV PRINCETON (US); UNIV SOUTHERN CALIFORNIA (US)  
**EC:** H01L51/50E8; H01L51/00M6H; (+1) **IPC:** H05B33/14; H01L51/30; H01L51/50 (+5)  
**Publication info:** **TW279163B B** - 2007-04-11
- 6 White light emitting oleds from combined monomer and aggregate emission**  
**Inventor:** THOMPSON MARK E (US); BROOKS JASON (US); (+3) **Applicant:**  
**EC:** H01L51/50E8; H01L51/00M6H; (+1) **IPC:** C09K11/06; H01L51/30; H01L51/50 (+6)  
**Publication info:** **US6863997 B2** - 2005-03-08  
**US2003175553 A1** - 2003-09-18
- 7 White light emitting OLEDs from combined monomer and aggregate emission**  
**Inventor:** THOMPSON MARK E (US); BROOKS JASON (US); (+3) **Applicant:**  
**EC:** H01L51/50E8; H01L51/00M6H; (+1) **IPC:** H01L51/30; H01L51/50; H01L51/00 (+4)  
**Publication info:** **US6869695 B2** - 2005-03-22  
**US2003124381 A1** - 2003-07-03
- 8 Organic light emitting devices with electron blocking layers**  
**Inventor:** THOMPSON MARK E (US); ADAMOVICH VADIM (US); (+3) **Applicant:**  
**EC:** H01L51/00M6H **IPC:** H01L51/30; H01L51/50; H01L51/00 (+4)  
**Publication info:** **US6951694 B2** - 2005-10-04  
**US2004048101 A1** - 2004-03-11
- 9 Organic light emitting devices with electron blocking layers**  
**Inventor:** THOMPSON MARK E (US); ADAMOVICH VADIM (US); (+3) **Applicant:**  
**EC:** H05B33/14; C09K11/06; (+1) **IPC:** H05B33/12; H05B33/12  
**Publication info:** **US2006024526 A1** - 2006-02-02

**10 WHITE LIGHT EMITTING OLEDs FROM COMBINED MONOMER AND AGGREGATE EMISSION****Inventor:** THOMPSON MARK E; BROOKS JASON;  
(+3)**Applicant:** UNIV PRINCETON (US); UNIV  
SOUTHERN CALIFORNIA (US)**EC:** H01L51/50E8; H01L51/00M6H; (+1)**IPC:** C09K11/06; H01L51/30; H01L51/50 (+7)**Publication info:** WO03059015 A1 - 2003-07-17

---

Data supplied from the *esp@cenet* database - Worldwide

**WHITE LIGHT EMITTING OLEDs FROM COMBINED MONOMER AND AGGREGATE EMISSION****Patent number:** JP2005514754T**Publication date:** 2005-05-19**Inventor:****Applicant:****Classification:****- international:** *C09K11/06; H01L51/30; H01L51/50; H01L51/00; C09K11/06; H01L51/05; H01L51/50; H01L51/00; (IPC1-7): H05B33/14; C09K11/06***- european:** H01L51/50E8; H01L51/00M6H; H01L51/50E3**Application number:** JP20030559196T 20021226**Priority number(s):** US20010344133P 20011228; US20020112257 20020329; US20020368496P 20020329; WO2002US41578 20021226**Also published as:**WO03059015 (A1)  
EP1472908 (A1)  
US6863997 (B2)  
US2003175553 (A1)  
EP1472908 (A0)

more &gt;&gt;

**Report a data error he**

Abstract not available for JP2005514754T

Abstract of correspondent: **WO03059015**

The present invention relates to efficient organic light emitting devices OLEDs. More specifically, the present invention relates to white-emitting OLEDs, or WOLEDs. The devices of the present invention employ two emitters in a single emissive region to sufficiently cover the visible spectrum. White emission is achieved from two emitters in a single emissive region through the formation of an aggregate by one of the emissive centers. This allows the construction of simple, bright and efficient WOLEDs that exhibit a high color rendering index.

The present invention relates to efficient organic light emitting devices (OLEDs). More specifically, the present invention relates to white-emitting OLEDs, or WOLEDs. The devices of the present invention employ two emitters in a single emissive region to sufficiently cover the visible spectrum. White emission is achieved from two emitters in a single emissive region through the formation of an aggregate by one of the emissive centers. This allows the construction of simple, bright and efficient WOLEDs that exhibit a high color rendering index.

Data supplied from the *esp@cenet* database - Worldwide

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>H 0 5 B 33/14  
C 0 9 K 11/06

F I

H 0 5 B 33/14 B  
C 0 9 K 11/06 6 4 5  
C 0 9 K 11/06 6 6 0

テーマコード(参考)

3 K 0 0 7

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全41頁)

(21) 出願番号 特願2003-559196 (P2003-559196)  
 (86) (22) 出願日 平成14年12月26日 (2002.12.26)  
 (85) 翻訳文提出日 平成16年6月25日 (2004.6.25)  
 (86) 国際出願番号 PCT/US2002/041578  
 (87) 国際公開番号 W02003/059015  
 (87) 国際公開日 平成15年7月17日 (2003.7.17)  
 (31) 優先権主張番号 60/344,133  
 (32) 優先日 平成13年12月28日 (2001.12.28)  
 (33) 優先権主張国 米国 (US)  
 (31) 優先権主張番号 10/112,257  
 (32) 優先日 平成14年3月29日 (2002.3.29)  
 (33) 優先権主張国 米国 (US)  
 (31) 優先権主張番号 60/368,496  
 (32) 優先日 平成14年3月29日 (2002.3.29)  
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

(71) 出願人 591003552  
 ザ、トラスティーズ オブ プリンストン  
 ユニバーシティ  
 アメリカ合衆国ニュージャージー州、プリ  
 ンストン、ピー、オー、ボックス、36  
 (71) 出願人 502023332  
 ザ ユニバーシティ オブ サザン カリ  
 フォルニア  
 アメリカ合衆国、カリフォルニア、ロサン  
 ゼルス、サウス ホープ ストリート  
 3716、スウィート 313  
 (74) 代理人 100066692  
 弁理士 浅村 皓  
 (74) 代理人 100072040  
 弁理士 浅村 肇

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 モノマー及び凝集体複合発光に由来する白色発光OLED

## (57) 【要約】

本発明は、効率のよい有機発光素子 (OLED) に関する。より特定すれば、本発明は、白色発光OLED又はWOLEDに関する。本発明の素子は、可視波長域を十分に包含する単一の発光領域内で2つの発光材料を採用する。白色発光は、発光中心の1つによる凝集体の形成を通じた単一発光領域内の2つの発光材料により実現する。これにより、高い演色評価数を示す、単純で明るくかつ効率のよいWOLEDの組立てが可能となる。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

発光層を含む有機発光素子であって、前記発光層が、  
凝集体発光材料、及び  
モノマー発光材料

を含み、前記凝集体発光材料からの発光が、前記モノマー発光材料からの発光よりエネルギーが低く、かつ前記凝集体発光材料と前記モノマー発光材料の複合発光が、可視スペクトルを十分に包含して白色発光をもたらす素子。

## 【請求項 2】

前記凝集体発光材料が、エキシマーである請求項 1 に記載の素子。

10

## 【請求項 3】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光により発光する請求項 1 に記載の素子。

## 【請求項 4】

前記エキシマー発光材料及び前記モノマー発光材料が、同一の化合物からなる請求項 3 に記載の素子。

## 【請求項 5】

前記モノマー発光材料及び凝集体発光材料が、りん光を発する有機金属化合物である請求項 3 に記載の素子。

## 【請求項 6】

前記凝集体発光材料が、FPt (acac) を含み、前記モノマー発光材料が、FIr (pic) を含む請求項 5 に記載の素子。

20

## 【請求項 7】

前記複合発光が、少なくとも約 80 の演色評価数を有する請求項 1 に記載の素子。

## 【請求項 8】

前記複合発光が、約 0.30 から約 0.40 の CIE x 座標及び約 0.30 から約 0.45 の CIE y 座標を有する請求項 1 に記載の素子。

## 【請求項 9】

前記発光層が、励起錯体発光材料及びモノマー発光材料を含む請求項 1 に記載の素子。

## 【請求項 10】

前記励起錯体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光により発光する請求項 9 に記載の素子。

30

## 【請求項 11】

前記モノマー発光材料及び励起錯体発光材料が、りん光を発する有機金属化合物である請求項 10 に記載の素子。

## 【請求項 12】

前記発光層が、ポリマーマトリックスをさらに含む請求項 1 に記載の素子。

## 【請求項 13】

前記ポリマーマトリックスが、PVKである請求項 12 に記載の素子。

## 【請求項 14】

陽極、  
正孔輸送層、  
電子輸送層、及び  
陰極

40

を備えた有機発光素子であって、前記正孔輸送層又は前記電子輸送層が、発光層であり、前記発光層が凝集体発光材料及びモノマー発光材料を含み、前記凝集体発光材料からの発光が、前記モノマー発光材料からの発光よりエネルギーが低く、かつ前記凝集体発光材料と前記モノマー発光材料の複合発光が、可視スペクトルを十分に包含して白色発光をもたらす素子。

## 【請求項 15】

50

前記正孔輸送層が、発光層である請求項 1 4 に記載の素子。

【請求項 1 6】

前記電子輸送層が、発光層である請求項 1 4 に記載の素子。

【請求項 1 7】

前記凝集体発光材料が、エキシマーである請求項 1 4 に記載の素子。

【請求項 1 8】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光により発光する請求項 1 4 に記載の素子。

【請求項 1 9】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、同一の化合物からなる請求項 1 8 に記載の素子。

【請求項 2 0】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光を発する有機金属化合物である請求項 1 8 に記載の素子。

【請求項 2 1】

前記凝集体発光材料が、F P t ( a c a c ) を含み、前記モノマー発光材料が、F I r ( p i c ) を含む請求項 2 0 に記載の素子。

【請求項 2 2】

前記複合発光が、少なくとも約 8 0 の演色評価数を有する請求項 1 4 に記載の素子。

【請求項 2 3】

前記複合発光が、約 0 . 3 0 から約 0 . 4 0 の C I E x 座標及び約 0 . 3 0 から約 0 . 4 5 の C I E y 座標を有する請求項 1 4 に記載の素子。

【請求項 2 4】

前記発光層が、励起錯体発光材料及びモノマー発光材料を含む請求項 1 4 に記載の素子。

【請求項 2 5】

前記励起錯体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光により発光する請求項 2 4 に記載の素子。

【請求項 2 6】

前記モノマー発光材料及び励起錯体発光材料が、りん光を発する有機金属化合物である請求項 2 4 に記載の素子。

【請求項 2 7】

前記発光層が、ポリマーマトリックスをさらに含む請求項 1 4 に記載の素子。

【請求項 2 8】

前記ポリマーマトリックスが、P V Kである請求項 2 7 に記載の素子。

【請求項 2 9】

前記素子が、励起子障壁層をさらに含む請求項 1 4 に記載の素子。

【請求項 3 0】

前記素子が、正孔注入層をさらに含む請求項 1 4 に記載の素子。

【請求項 3 1】

陽極、  
正孔輸送層、  
発光層、  
電子輸送層、及び  
陰極

を備えた有機発光素子であって、前記発光層が凝集体発光材料及びモノマー発光材料を含み、前記凝集体発光材料からの発光が、前記モノマー発光材料からの発光よりエネルギーが低く、かつ前記凝集体発光材料と前記モノマー発光材料の複合発光が、可視スペクトルを十分に包含する白色発光をもたらす素子。

【請求項 3 2】

20

40

50

前記発光層が、エキシマー発光材料及びモノマー発光材料を含む請求項 3 1 に記載の素子。

【請求項 3 3】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光により発光する請求項 3 1 に記載の素子。

【請求項 3 4】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、同一の化合物からなる請求項 3 3 に記載の素子。

【請求項 3 5】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光を発する有機金属化合物である請求項 3 3 に記載の素子。 10

【請求項 3 6】

前記凝集体発光材料が、FPt(acac)を含み、前記モノマー発光材料が、FIr(pic)を含む請求項 3 5 に記載の素子。

【請求項 3 7】

前記複合発光が、少なくとも約 80 の演色評価数を有する請求項 3 1 に記載の素子。

【請求項 3 8】

前記複合発光が、約 0.30 から約 0.40 の CIE x 座標及び約 0.30 から約 0.45 の CIE y 座標を有する請求項 3 1 に記載の素子。

【請求項 3 9】

前記凝集体発光材料が、励起錯体である請求項 3 1 に記載の素子。 20

【請求項 4 0】

前記励起錯体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光により発光する請求項 3 9 に記載の素子。

【請求項 4 1】

前記モノマー発光材料及び励起錯体発光材料が、りん光を発する有機金属化合物である請求項 4 0 に記載の素子。

【請求項 4 2】

前記発光層が、ポリマーマトリックスをさらに含む請求項 3 1 に記載の素子。

【請求項 4 3】

前記ポリマーマトリックスが、PVKである請求項 4 2 に記載の素子。 30

【請求項 4 4】

前記素子が、励起子障壁層をさらに含む請求項 3 1 に記載の素子。

【請求項 4 5】

請求項 1 に記載の素子を組み込んだ光源。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、効率のよい有機発光素子(OLED)に関する。より特定すれば、本発明は、白色発光OLED又はWOLEDに関する。本発明の素子は、可視波長域を十分にカバーする単一の発光領域内で2つの発光材料を採用する。白色発光は、発光中心の1つによる凝集体の形成を通じた単一発光領域内の2つの発光材料により実現する。これにより、高い演色評価数を示す、単純で明るくかつ効率のよいWOLEDの組立てが可能となる。 40

【背景技術】

【0002】

電流によって励起されると発光する薄膜材料を使用する有機発光素子(OLED)は、ますます一般的な形のフラットパネルディスプレイ技術になることが期待される。それは、OLEDが、携帯電話、パーソナルデジタルアシスタント(PDA)、コンピュータディスプレイ、自動車の情報ディスプレイ、テレビジョンモニタ、並びに一般照明用の光源を含む幅広い種類の潜在用途を有するためである。それらの明るい色彩、広い視野角、フ 50

ルモーションビデオとの両立性、広い温度範囲、薄くて適合性のある形状因子、低電力要件、低コスト製造プロセスの可能性等により、O L E Dは、成長を続ける現在年間400億ドルの電子ディスプレイ市場の優位にある陰極線管（C R T）及び液晶ディスプレイ（L C D）に代わるこれからの技術と見られている。それらの高い発光効率のために、電界りん光O L E Dは、白熱電灯、及びおそらく蛍光灯にさえ、一定のタイプの応用においては取って代わる可能性を有するものと見られる。

#### 【 0 0 0 3 】

構造が有機オプトエレクトロニクス材料の層を使用する型の素子は、一般に、光学発光をもたらす共通の機構に依存する。一般的に、この機構は、捕獲電荷の発光再結合に基づいている。特に、O L E Dは、陽極と陰極の間の少なくとも2つの薄い有機層から構成されている。これらの層の1つの材料は、特にその材料の正孔を輸送する能力、「正孔輸送層」（H T L）、に基づいて選択し、他の層の材料は、特にその電子を輸送する能力、「電子輸送層」（E T L）によって選択する。そのような構造を有するその素子は、陽極にかかる電位が陰極にかかる電位より高い時に順方向バイアスのダイオードとして見ることができる。このバイアスの状態の下で、陽極は、正孔（正電荷担体）をH T Lに注入し、一方陰極は、電子をE T Lに注入する。陽極に隣接する発光媒体部分は、したがって、正孔注入及び輸送域を形成し、一方陰極に隣接する発光媒体部分は、電子注入及び輸送域を形成する。注入された正孔及び電子は、それぞれ逆に帯電した電極に向かって移動する。電子及び正孔が同一分子に局在化すると、フレンケル励起子が形成される。これらの励起子は、最低のH O M O（最高占有分子軌道）－L U M O（最低非占有エネルギー軌道）エネルギーギャップを有する材料に捕獲されている。短命の励起子の再結合は、最低非占有エネルギー軌道（L U M O）から最高占有分子軌道（H O M O）へ落下する電子として、一定の条件の下で、光電子発光機構によって選択的に起こる緩和を伴い、視覚化が可能となる。

#### 【 0 0 0 4 】

O L E DのE T L又はH T Lとして機能する材料は、励起子の形成及びエレクトロルミネセンスの発光を起こす媒体としても役立つ。そのようなO L E Dを、「単一ヘテロ構造」（S H）と称する。別法では、エレクトロルミネッセント材料は、「二重ヘテロ構造」（D H）と呼ばれるもののの中のH T LとE T Lの間の別の発光層の中に存在し得る。

#### 【 0 0 0 5 】

単一ヘテロ構造のO L E D中では、正孔が、H T LからE T Lに注入され、そこでそれらが電子と結合して励起子を形成するか、又は、電子が、E T LからH T Lに注入され、それらがそこで正孔と結合して励起子を形成するかのいずれかである。励起子は、最低のエネルギーギャップを有する材料に捕獲され、普通使用されるE T L材料は、一般に、普通使用されるH T L材料より小さいエネルギーギャップを有するために、単一ヘテロ構造素子の発光層は、一般的にはE T Lである。そのようなO L E Dにおいては、E T L及びH T L用として使用される材料は、正孔が、H T LからE T Lに効率よく注入され得るように選択すべきである。また、最良のO L E Dは、H T L材料とE T L材料のH O M O準位の間に良好なエネルギー準位配列を有するものと考えられる。

#### 【 0 0 0 6 】

二重ヘテロ構造O L E Dにおいては、正孔がH T Lから注入され、電子がE T Lから別の発光層に注入され、そこで正孔と電子が結合して励起子を形成する。

#### 【 0 0 0 7 】

O L E Dからの発光は、一般的には蛍光発光によるものであったが、りん光によるO L E D発光が最近実証された。本明細書で使用する「りん光」の用語は、有機分子の三重項励起状態からの発光を指し、「蛍光発光」の用語は、有機分子の一重項励起状態からの発光を指す。ルミネッセンスの用語は、蛍光発光又はりん光のいずれかを指す。

#### 【 0 0 0 8 】

りん光をうまく利用すると、有機エレクトロルミネセンス素子に対して大きな期待が持てる。例えば、りん光の利点は、正孔と電子の再結合によって形成される励起子のすべて

10

20

30

40

50



が、一重項励起状態又は三重項励起状態のいずれであっても、ルミネセンスに参加できる可能性があることである。これは、有機分子の最低励起一重項状態が、一般的に、最低励起三重項状態より若干高いエネルギーのところにあるためである。例えば、典型的なりん光有機金属化合物において、最低励起一重項状態は、最低励起三重項状態に減衰し、それによってりん光が生じる。対照的に、一重項励起状態から得られる蛍光発光を生じることができ、蛍光素子中の励起子の割合はわずか（約25%）にすぎない。最低励起三重項状態で生成する蛍光素子中の残りの励起子は、一般的に、そこから蛍光が生じる高いエネルギーの一重項励起状態に転化することができない。このエネルギーは、したがって、可視光を発光するよりも素子を加熱するために浪費され、プロセスを崩壊することになる。

【0009】

10

一般的には、有機分子からのりん光は、蛍光発光よりは普通のものではない。しかしながら、りん光は、適切な条件設定の下では有機分子から観察することができる。ランタン系元素に配位した有機分子は、ランタニド金属に局在化した励起状態からしばしば発光する。その発光は三重項励起状態からではない。さらに上記の発光は、期待されるOLEDの応用で実用的価値のものとして十分に高い効率を生むことが可能であることを示していない。ユロピウムジケトナート錯体は、このタイプの種類の一群を示している。

【0010】

有機りん光は、非共有電子対を持つヘテロ原子を含有する分子中で見られるが、一般的に非常に低温においてのみである。ベンゾフェノン及び2, 2'-ビピリジンがそのような分子である。りん光は、有機分子を高い原子番号の原子に近接して、好ましくは結合により、閉じ込めることによって室温において蛍光発光を押し切って高めることが可能である。重原子効果と呼ばれるこの現象は、スピン軌道結合として知られる機構によって生み出される。関連するりん光遷移は、トリス(2-フェニルピリジン)イリジウム(III)などの分子で見られる金属-配位子電荷移動(MLCT)である。

20

【0011】

高効率の青、緑、赤の電界りん光は、低い電力消費のフルカラーディスプレイに応用するための必要条件である。最近、一重項励起子及び三重項励起子の両方を取り込み100%に近づく内部量子効率( $\eta_{int}$ )をもたらす高効率の緑と赤の有機電界りん光素子が実証された。以下参照: Baldo, M. A., O'Brien, D. F., You, Y., Shoustikov, A., Sibley, S., Thompson, M. E., Forrest, S. R., Nature (ロンドン), 359, 151~154 (1998); Baldo, M. A., Lamansky, S., Burrows, P. E., Thompson, M. E., Forrest, S. R., Appl. Phys. Lett., 75, 4~6 (1999); Adachi, C., Baldo, M. A., Forrest, S. R., Appl. Phys. Lett., 77, 904~906, (2000); Adachi, C., Lamansky, S., Baldo, M. A., Kwong, R. C., Thompson, M. E., Forrest, S. R., Appl. Phys. Lett., 78, 1622~1624 (2001); Adachi, C., Baldo, M. A., Thompson, M. E., Forrest, S. R., Bull. Am. Phys. Soc., 46, 863 (2001)。緑のりん光材料、fac 40  
トリス(2-フェニルピリジン)イリジウム(Ir(ppy))を使用して、特に、内部量子効率が>85%に相当する外部量子効率( $\eta_{ext}$ ) (17.6±0.5)%が、広いエネルギーギャップのホスト材料、3-フェニル-4-(1'-ナフチル)-5-フェニル-1, 2, 4-トリアゾール(TAZ)を使用して実現した。Adachi, C., Baldo, M. A., Thompson, M. E., Forrest, S. R., Bull. Am. Phys. Soc., 46, 863 (2001)を参照されたい。より最近、高効率( $\eta_{ext}$  = (7.0±0.5)%)の赤色の電界りん光が、ビス(2-(2'-ベンゾ[4, 5-a]チエニル)ピリジンナート-N, C<sup>3</sup>)イリジウム(アセチルアセトナート) [Btp, Ir(acac)]を採用して実証された。Adachi, C., Lamansky, S., Baldo, M. A., Kwong, R. C., Thomp 50

son, M. E., Forrest, S. R., Appl. Phys. Lett., 78, 1622~1624 (2001) を参照されたい。

#### 【0012】

これら後者の場合のそれぞれにおいて、高効率、どちらもホスト一重項及び三重項状態から蛍りん光体三重項へのエネルギー転移によるか、又はりん光材料上での電荷の直接捕獲により励起状態の最高100%までを取り込むことにより獲得する。これは、小分子又はポリマーのいずれかの有機発光素子(OLED)の蛍光発光を使用して期待することができるものを超える重要な改良点である。Baldo, M. A., O'Brien, D. F., Thompson, M. E., Forrest, S. R., Phys. Rev., B60, 14422~14428 (1999); Friend, R. H., Gymer, R. W., Holmes, A. B., Burroughes, J. H., Marks, R. N., Taliani, C., Bradley, D. D. C., Dos Santos, D. A., Bredas, J. L., Logdlund, M., Salaneck, W. R., Nature (ロンドン), 397, 121~128 (1999); Cao, Y., Parker, I. D., Yu, G., Zhang, C., Heeger, A. J., Nature (ロンドン), 397, 414~417 (1999) を参照されたい。いずれの場合もこれらの転移は、共鳴発熱過程を伴う。りん光材料の三重項エネルギーが増すに従って、適当な高さのエネルギー三重項状態の適切なホストが見つかる可能性が低くなる。Baldo, M. A., Forrest, S. R., Phys. Rev., B62, 10958~10966 (2000) を参照されたい。ホストに対して必要な非常に大きい励起子エネルギーもまた、ホスト材料が、OLED構造に用いられる他の材料との適切なエネルギー準位の配列を有しておらず、そのため効率のさらなる低下をきたしていることが示唆される。ホストの導電性とエネルギー転移性の間のこの競合を排除するために、効率のよい青色電界りん光へのルートは、ホストの近共鳴励起状態からりん光材料のより高い三重項エネルギーへの吸熱を伴うエネルギー転移を必要とするかもしれない。Baldo, M. A., Forrest, S. R., Phys. Rev., B62, 10958~10966 (2000); Ford, W. E., Rodgers, M. A. J., J. Phys. Chem., 96, 2917~2920 (1992); Harriman, A., Hissler, M., Khatyr, A., Ziesse, R., Chem. Commun., 735~736 (1999) を参照されたい。転移に必要なエネルギーが、熱エネルギーよりあまり大きくないとすれば、この方法は非常に効率的であり得る。

#### 【0013】

白色発光源の品質は、単純な一組のパラメータにより完全に書き表すことができる。光源の色は、そのCIE色度座標x及びyにより与えられる。そのCIE座標は、一般的に、二次元の小区画上に表される。単色は、左側下部の青から始まって時計方向にスペクトルの色を通り抜ける馬蹄形の右側下部の赤まで、曲線の外辺部に位置する。与えられたエネルギー及びスペクトル形状の光源のCIE座標は、その曲線の領域内に入る。すべての波長の光を均等に合わせると、図の中心(CIExy座標、0.33, 0.33)に見出される白、すなわち双曲線の中心が与えられる。複数光源の光を混合すると個々の光源のCIE座標を加重平均した強度によって表される。したがって、複数の光源からの光の混合を、白色光を発生させるために使用することができる。2成分及び3成分の白色光光源が見る者にとっては同等のように見えても(CIExy座標、0.32, 0.32)、それらは対等の照明源ではない。照明のためにこれらの白色光光源の使用を考える場合、光源のCIE座標に加えて、CIE演色評価数(CRI)を考慮する必要がある。CRIは、その光源が、それが照明する対象物の色をいかに演色するかの表示を与える。標準の光に対して与えられた光源の完全な組合せは、100のCRIを与える。ある用途には、少なくとも70のCRI値で容認されるが、好ましい白色光光源は、約80以上のCRIを有する。

#### 【0014】

前記の白色OLEDを生ずるために用いる最も成功に結びつく方法は、3つの異なる発

光材料（発光ドーパント）を個々の層に分離することを必要とする。3つの発光中心は、一般的に3つより少ない発光材料で全体の可視スペクトルをカバーするにはラインが十分に広くないため、良好な演色評価数（DRI）の値を実現するために必要である。WOLEDを設計する1つの取り組み方は、個々のドーパントを別々の層に分離するものである。そのような素子の発光ゾーンは、したがって、別個の発光層から構成されている。Kido, J. 等、Science、267、1332～1334（1995）。上記の素子の設計は、各層の厚さ及び組成の注意深い管理が良好なカラーバランスを実現するために肝要であるので複雑であり得る。発光材料を個々の層に分離することは、赤、緑、青の発光材料の間のエネルギー転移を防ぐために最も重要である。問題は、最も高いエネルギーの発光材料（青色）が、その励起子を緑及び赤の発光材料に効率よく転移してしまうことである。このエネルギー転移過程の効率は、フェルスターエネルギー移動式により説明される。青の発光材料が、緑又は赤の発光材料の吸収スペクトルと良好なスペクトルの重複部分を有しており、振動子強度がすべての遷移に対して高い場合は、エネルギー移動過程は効率的となろう。これらのエネルギー移動は、30 Å以上の間隔を超えて起こり得る。同様に、緑の発光材料は、その励起子を容易に赤の発光材料に移動する。最終的な結果は、その3つが等しい濃度のフィルム中にドーブされる場合、赤の発光材料が分光組成を支配することになる。蛍光染料では、励起子の移動距離は、比較的短く、3つの発光色の間のバランスを、ドーパント比を変えることによって制御することが可能である（3つの色すべてにおいて等しい強度を得るためには、緑より青がより多く、赤より緑がより多く必要である）。ドーパント濃度が低く保たれる場合は、ドーパント間の平均距離は、フェルスターのエネルギー移動距離未満に保つことができ、エネルギー移動の影響を最低限にすることができる。3つの染料全部を単一の層に有するには、各ドーパントが<1%で存在する4成分系フィルムを必要とする。そのようなフィルムの調製は、信頼度をもって行うのは困難である。ドーパントの比率に少しでも変化があれば、素子の色品質に厳しく影響を及ぼすであろう。

【0015】

りん光発光材料の状況は、多少異なる。りん光ドーパントのフェルスター半径は、蛍光発光ドーパントのものより低いが、その励起子拡散距離は、>1000 Åであり得る。電界りん光素子の高効率を実現するために、りん光材料は、一般に、蛍光発光ドーパント（一般的に>6%）に対するよりはるかに高い濃度で存在する必要がある。最終的な結果は、単一の層内でりん光材料を共に混合することにより、丁度蛍光発光材料で見られたような厳しいエネルギー移動の問題を引き起こすことになる。成功裏に使用してきた方法は、りん光材料を別の層に分離し、エネルギー移動の問題を排除している。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0016】

本発明は、効率のよい有機発光素子（OLED）を対象とする。より特定すれば、本発明は、白色発光OLED又はWOLEDを対象とする。本発明の素子は、可視波長域を十分にカバーする単一の発光領域内で2つのルミネセント発光材料、すなわち発光団（lumophore）を採用する。その発光団は、蛍光発光（一重項励起状態から）によるか、又はりん光（三重項励起状態から）により光を発光することができる。白色発光は、発光団の1つによる凝集体の形成を通じた単一発光領域内の2つのルミネセント発光材料により実現する。2つの発光中心（凝集体発光材料及びモノマー発光材料）は、単一の発光層中にドーブする。これにより、高い演色評価数を示す単純で明るくかつ効率のよいWOLEDの組立てが可能となる。

【0017】

したがって、本発明の目的は、高い外部発光効率（ $\eta_{\text{ext}}$ ）及び輝度を示す白色発光OLEDを製造することである。

【0018】

本発明の他の目的は、高い演色評価数を示す白色発光OLEDを製造することである。

## 【 0 0 1 9 】

本発明のさらに他の目的は、( 0 . 3 3 , 0 . 3 3 ) に近い C I E x y 色度座標を有する白色発光を生ずる白色発光有機発光素子を製造することである。

## 【 0 0 2 0 】

本発明のさらに他の目的は、現在は従来の蛍光灯を遍在的に満たしているような拡散光照明の用途で、大きな面積の効率のよい光源用として使用することができる O L E D を提供することである。

## 【課題を解決するための手段】

## 【 0 0 2 1 】

例えば、本発明の 1 つの目的は、発光領域を含む白色発光 O L E D を製造することであ 10  
って、その発光領域が、凝集体発光材料、及びモノマー発光材料を含み、その凝集体発光材料からの発光は、モノマー発光材料からの発光よりもエネルギーが低く、かつ凝集体発光材料とモノマー発光材料のその複合発光は、可視スペクトルを十分に包含する白色発光を与える。

## 【 0 0 2 2 】

本発明が、そこに示された厳密な配列及び手段に限定されることを意味するものではないことが理解されているという前提で、本発明を説明するために、代表的な実施形態を添付図に示す。

## 【発明を実施するための最良の形態】

## 【 0 0 2 3 】

本発明をここで本発明の特別好ましい実施形態について詳細に説明する。これらの実施 20  
形態は、説明に役立つ例とすることのみを意図しており、本発明をそれらに限定するものではない。

## 【 0 0 2 4 】

本発明は、効率のよい白色発光 O L E D を製造することを対象としている。本発明の素子は、可視スペクトルを十分にカバーするように単一の発光領域に 2 つの発光材料を採用する。白色発光は、単一の発光領域内の 2 つのルミネセント発光材料により発光団の 1 つ 30  
による凝集体の形成を通して達成される。その凝集体発光材料は、基底状態及び／又は励起状態で結合している複数の発光性分子又は部分を含んでいる。一般に、その凝集体発光材料は、互いによく似ているか又は異なる 2 つの発光性分子（すなわち二量体）から構成 30  
されている。発光団は、蛍光発光（一重項励起状態から）によるか、又はりん光（三重項励起状態から）によって発光が可能である。その 2 つの発光中心（凝集体発光材料及びモノマー発光材料）は、単一の発光層中にドーピングする。これにより、高い演色評価数を発揮する単純で明度があり効率のよい W O L E D の構成が可能となる。白色光を生み出す方法 40  
の中で、電界りん光は、100%の内部量子効率を実現するその実証されている可能性により、O L E D 発光の最も有効な機構として優先される。意外なことに、励起状態の凝集体からのりん光は、100%の内部量子効率を実現する可能性を考慮してさえ、予想以上に大きいことがしばしばであることが見出された。一般的には、有機金属りん光材料を導電性ホスト中にドーピングすることによって達成される電界りん光は、ディスプレイの用途に必要な原色の発生には首尾よく用いられてきたが、白色光源で必要となる幅広いスペ 40  
クトル発光の効率のよい発生は、今日まで手に入りにくいままであった。

## 【 0 0 2 5 】

2001年5月16日に出願した、題名が「高効率多色電界りん光 O L E D ( H i g h E f f i c i e n c y M u l t i - c o l o r E l e c t r o - p h o s p h o r e s c e n t O L E D s ) 」の同時係属出願第 60 / 291, 496 号に開示されているように、発光材料を別々の層に分ければ 3 つのドーパントのエレクトロルミネセント素子の色調整を比較的単純な工程にすることができるが、多層膜のアプローチは素子に複雑さが加わる。もし素子が 3 つより 2 つの発光材料で作製でき、かつその 2 つの発光材料が同一発光領域内に存在することができれば、それはずっと単純なものとなるであろう。その場合には、素子は、単色のエレクトロルミネセント O L E D で実証されているものと同 50

じ高効率で寿命の長い構造に加工することができるであろう。わずか2つのドーパントを使用し、容認できるCRI値を得るためには、ドーパントの1つが、非常に幅の広い輝線を持たなければならない。残念ながら、幅の広い輝線は、一般的には、効率の悪い素子にしか見られなかった。

#### 【0026】

ドーパントの数及び多重カラーバンド構造に内在する構造の不均一性を減少する有望な方法は、その励起状態において幅広く発光する励起錯体（すなわち、その波動関数が隣接する異なる分子と一部重なり合う状態）を形成する発光団を採用することである。最近、理想的な白色光源（0.33, 0.33）に近い国際照明委員会（Commission Internationale de l'Eclairage）（CIE）座標、及び  $\eta_{\text{ext}} = 0.3\%$  の外部効率、 $\eta_{\text{p}} = 0.581 \text{ lm/W}$  の輝度効率及び最大輝度  $20000 \text{ cd/m}^2$  を有する蛍光励起錯体OLEDが、実証された。Berggren, M. 等、J. Appl. Phys. 76, 7530~7534 (1994)；及びFeng, J. 等、Appl. Phys. Lett. 78, 3947~3949 (2001)を参照されたい。これらの値は、実用的な照明用途に必要な数値をかなり下回っている。そのOLEDからの発光は、もっぱら励起錯体によって生じていることが報告されている。

#### 【0027】

効率のよい白色発光OLEDを実現するという問題の解決には、発光中心の1つがモノマーであり、他の発光中心が凝集体である単一発光領域内の2つのルミネセント発光材料からの発光を得ることが必要であることが判明した。その凝集体発光材料は、基底状態及び／又は励起状態で結合している複数の発光団を含んでいる。一般に、その凝集体発光材料は、互いによく似ているか又は異なる2つの分子（すなわち二量体）からなる。

#### 【0028】

エキシマー又は励起錯体は、凝集体発光材料を含む発光団が、励起状態で結合するが基底状態では結合しないときに形成される。エキシマーは、2つの同一の分子に及ぶ励起状態の波動関数をもつ二量体である。励起錯体は、2つの異なる分子に及ぶ励起状態の波動関数をもつ二量体である。エキシマー及び励起錯体において、構成分子は、励起した（励起子の）状態で互いに結合するが、緩和後は速やかに2つの別々の分子に解離する。その結末は、その励起子は、基底状態で吸収がないということである。エキシマー及び励起錯体の形成は、構成種のLUMO間にかかなりの重なり合いが存在する場合に有利である。エキシマー及び励起錯体のエネルギーは、回復する2つの分子のいずれかに位置している励起子のそれより低くその発光は一般的に幅が広い。エキシマー及び励起錯体は、両方共結合している基底状態はないので、それらは、電荷を担持するホストマトリックスから発光中心への効率のよいエネルギー移動を達成する独特の解決策を提供する。実際、2つの発光中心の場合には、エキシマー又は励起錯体の使用によって、発光中心間のエネルギー移動が防止され、複数のドーパントを使用する色調整を問題あるものにする複雑な分子間の相互作用が排除される。エキシマー及び励起子の特性を見直すには、Andrew Gilbert及びJim Baggett著、「分子光化学の本質（Essentials of Molecular Photochemistry）」、1991年、CRC Press、145~167頁を参照されたい。

#### 【0029】

本発明の他の実施形態においては、凝集体発光材料を含む分子は、基底状態及び励起状態の両方共結合している。例えば、りん光性有機金属化合物の二量体は、基底状態で金属-金属結合を持つことができる。実際には、凝集体発光材料を含む発光団が、OLEDの加工用に用いるタイプの分子状薄膜中にドーブされる時、基底状態で結合しているか否かを決定するのは困難であり得る。真実は、いくつかの凝集体発光材料にとっては、両極端の間のどこかという場合である可能性がある。例えば、りん光を発する有機金属化合物の二量体は、基底状態で弱い金属-金属結合を持ち得るが、励起状態においては、その結合が短縮されてその二量体が強く結合する。この場合、その二量体は、基底状態で結合しているため、エキシマー又は励起錯体ではない。そのりん光ドーパントは、ドーブしたフィ

ルム中の $\pi$ - $\pi$ スタッキング及び金属-金属相互作用の両方の中に多分含まれて、エキシマー又はMMLCT励起状態を生じることができる。したがって、これらのフィルムからの発光は、エキシマー及びオリゴマーの両方の励起状態からの寄与が受けられる。いずれの場合においても、観察される凝集体からの発光スペクトルは、基底状態で結合していてもいなくても、モノマーのそれより低いエネルギーで発生し、一般的には、幅広で構造化されていない。したがって、「エキシマー」又は「励起錯体」という用語は、本明細書で使用する場合、場合によって、強く結合している励起状態及び弱く結合している基底状態を指す。さらに、本明細書で使用する「凝集体」という用語は、通常理解されているエキシマー及び励起錯体を含む。

#### 【 0 0 3 0 】

本発明の1つの実施形態においては、モノマー発光及び凝集体発光の両方共が、同一ドーパントから得られる。他のドーパント分子と比較的密着しているそのようなドーパント分子は、凝集状態を形成することができるであろう。分離しているドーパント分子は、モノマー発光を与え、凝集体発光は与えないであろう。各発光中心からの相対的寄与率が適切に制御される場合は、発光層中の各発光材料の濃度を調節することによって白色OLEDをもたらすことができる。単一ルミネセントドーパントによって発光層からバランスのよく取れたモノマー発光及び凝集体発光を得て、かつ、高効率を達成するためには、モノマーと凝集体の比率をドーパントの適切な濃度のところで得なければならない。フィルム中の分子間の相互作用の性質、したがってモノマー発光と凝集体発光の度合いに影響を及ぼす異なる方法を用いてモノマー発光と凝集体発光の比を制御することができる。1つのそのような方法は、ドーパント分子の立体的な嵩の大きさを変えることである。2番目の方法は、ホストマトリックスを変えることである。両方法ともに、発光層中のドーパント材料の会合の程度、したがってモノマー状態及び凝集体状態の比率に影響を及ぼすものと考えられる。

#### 【 0 0 3 1 】

上記の方法を用い、WOLEDを、ドーパントの濃度を発光層全体にわたって実質的に同じになるように調整することによって、非常に高い効率及び非常に高いCRIの両方を備えるように組み立てることが可能ということが本発明の他と違う特徴である。隣接する分子との間に自然に起こる間隔の変化により、与えられたホストとドーパントの組合せに対する凝集体形成の程度が決まり、その結果モノマー発光と凝集体発光の所望のバランスが得られる。本発明の素子により生ずる発光スペクトルは、例えば、CIE<sub>x</sub>座標の約0.30から約0.40とCIE<sub>y</sub>座標の約0.30から約0.40とが組み合わせあって実質的に白く見えるように、可視スペクトルを十分にまたぐ。好ましくは、CIE<sub>xy</sub>座標は、約(0.33, 0.33)である。そのうえ、本発明の素子は、好ましくは、少なくとも70のCIE(国際照明委員会Commission Internationale de l'Eclairage)演色評価数(CRI)を有する白色発光を生ずることが可能である。より好ましくは、CRIは、約80より上である。別法では、非常に高いCRIを追及する代わりに所定のCIE座標を有する選ばれた色を生ずる方法が用いられ得る。

#### 【 0 0 3 2 】

本発明の素子は、陽極、HTL、ETL、及び陰極から構成される。さらに、その素子は、限定はされないが、励起子障壁層(EBL)、別の発光層、又は正孔注入層(HIL)などのさらなる層を含有していてもよい。1つの実施形態において、HTLは、また、励起子の形成及びエレクトロルミネセント発光が起こる領域としての機能も果たす。別法では、ETLが、励起子の形成及びエレクトロルミネセント発光が起こる領域としての機能を果たすことができる。さらに別の実施形態においては、その素子は、励起子の形成及びエレクトロルミネセント発光が起こる別の発光層を含むことができる。その発光領域は、2つのタイプの発光中心を含む。その発光中心の1つは、幅の広い発光スペクトルを提供する凝集体を形成する。他の発光材料は、モノマーとして発光する。本発明の1つの実施形態においては、単一のルミネセント材料で、凝集体発光材料として及びモノマー発光

10

20

30

40

50

材料としての両方の発光が可能である。高い演色評価数を生ずる色の最適化は、凝集体を形成する発光材料及びモノマー発光材料を、それらの発光が可視スペクトルをカバーするように選択し、発光材料の濃度を変化させることによって得ることができる。

#### 【 0 0 3 3 】

好ましい実施形態においては、その2つのルミネセント材料をマトリックス材料中にドーブする。そのマトリックス材料は、一般的には、電荷担持材料である。特に好ましい実施形態において、そのルミネセント材料は、りん光発光材料である（すなわち、それらは三重項励起状態から発光する）。電荷を担持するホスト及びドーパントとして存在する材料は、そのホスト材料からドーパント材料への高いレベルのエネルギー移動があるように選択する。高い効率、ホストの一重項及び三重項状態からりん光体三重項へのエネルギー移動、又はりん光材料上の電荷を直接捕獲し、それによって励起状態の100%までを取り込むことによって得る。加えて、これらの材料は、OLEDのための許容できる電氣的性質を生ずることが可能であることが必要である。さらに、上記のホスト及びドーパント材料は、便利な加工技術を用いてOLED中に容易に組み込むことができる出発材料を使ってOLED中に組み込むことができることが好ましい。例えば、小分子、非重合体材料は、視程距離内真空（line-of-sight）蒸着技術を用いるか、参照によりそっくりそのまま本明細書に組み込まれている「有機薄膜の低圧気相蒸着（Low Pressure Vapor Phase Deposition Of Organic Thin Films）」の表題で、1997年11月17日出願の米国特許出願第08/972,156号に開示されている有機気相蒸着（OVPD）技術を用いることにより蒸着することができる。別法では、ポリマー材料は、スピンコーティング技術を用いて付着させることもできる。

10

20

#### 【 0 0 3 4 】

本発明の好ましい実施形態において、素子の発光領域は、エキシマー及びモノマー発光材料からなる。そのモノマー及びエキシマーを含むルミネセント材料は、蛍光発光又はりん光により発光することができる。モノマー発光材料は、可視スペクトルの高エネルギー部分（例えば、青又は緑）で発光するものが好ましい。エキシマー発光材料は、好ましくは、可視スペクトルの低エネルギー部分をまたぐ幅の広い発光を提供する。このエキシマーの状態には吸収はなく、そのためモノマー発光材料からエキシマーへのエネルギー移動は、極微である。

30

#### 【 0 0 3 5 】

ドーブした層から効率のよいエキシマー発光を得るために、ドーパント濃度の管理は重要な要件である。エキシマーは、一般的に面状分子が互いに極めて接近した時に形成される。例えば、Ptのある錯体など、四角な平面状（square planar）の金属錯体が、濃厚溶液中及び薄膜中でエキシマーを形成することが実証されている。例えば、FPt（acac）は、ジクロロメタンの $10^{-6}$  M溶液中でモノマー発光を、そして濃縮した $10^{-3}$  M溶液中でエキシマー発光を示す。

#### 【 0 0 3 6 】

適当な濃度では、同一ドーパントからモノマー発光とエキシマー発光の両方を得ることが可能である。他のドーパント分子と比較的密着しているドーパント分子だけがエキシマー状態を形成できよう。分離しているドーパント分子は、エキシマー発光ではなく、モノマー発光を提供する。各発光材料からの相対的寄与率が、例えば、発光層中の各発光材料の濃度を調節することによって適切に制御されて、モノマーが青を発色し、エキシマーが黄色を発色している場合は、白色OLEDがもたらされ得る。

40

#### 【 0 0 3 7 】

エキシマー状態の形成には、2つの発光性分子が、それらの1つがその励起状態に進んだ時に二量体化することができるように、互いに極めて接近していることが必要となる。このことは、エキシマーの形成には、強い濃度依存性が存在するはずであることを示唆している。例えば、FPtを1%でCBLなどのホストマトリックス中にドーブする時は、薄膜のフォトルミネセンススペクトルにはモノマー発光のみが観察される。この低いドー

50

ピング濃度では、分子は分離する。ドーピングの濃度が上がるに従い、モノマーのラインが減ってエキシマー発光の量が増える。F P t のドーピング濃度が 2 ~ 3 % のところで、モノマー発光対エキシマー発光の比が 1 : 1 に近づく。このドーピング濃度のところで、ある程度の F P t 分子は、分離しており、他は、別の F P t 分子と極めて接近していて有効なエキシマーの形成をもたらしている。ドーピング濃度 6 % のところでは、完全に近いエキシマー発光が観察される。

【 0 0 3 8 】

O L E D が、約 2 ~ 3 % のところでドーピングした F P t で調製される場合は、白色 O L E D を調製することが可能なはずである。この素子は、均一にドーピングした薄膜中に存在する単一のドーパントのみを有する。残念ながら、約 2 ~ 3 % のドーピング濃度は、一般にホストの励起子を効率よく消滅させるには低すぎて、エレクトロルミネセンススペクトル中にかなりのホストの発光を生じることになる。効率のよいりん光 O L E D を作製するためには、ドーピング濃度は約 6 % より上の方が好ましく、それより高いドーピング濃度で最高の効率となる。効率のよい O L E D を調製するのに十分に高いドーピング濃度では、F P t に対するエキシマー発光のみが観察される。単一のドーパントから（同時のモノマー発光及びエキシマー発光により）さらに効率のよい白色光発光を得るためには、バランスの取れた発光をもたらすドーピング濃度を増すべきである。

【 0 0 3 9 】

発光材料の立体的嵩が増す場合、エキシマーが固定の状態では形成される見込みは減少する。嵩の付加は、分子が密接に会合することを妨げる。このことは F P t 2 のスペクトル（図 2）ですぐに分かる。錯体の t - B u 基が、ドーピングしたフィルム中のこれらの分子の面と面が狭く詰まるのを妨げる。その結果、25 % もの高いドーピング濃度で F P t 2 をドーピングした薄膜のフォトルミネセンススペクトルにはモノマー発光しか観察されない。F P t はあまりにも容易にエキシマーを形成し、F P t 2 は、エキシマーを形成しない。立体的嵩が中間濃度の分子を使用する場合は、適度のドーピング濃度で、モノマーとエキシマーが混合された発光を得ることが可能である。付加された立体的嵩の役割は、F P t 3（図 10）及び F P t 4（図 11）の薄膜のフォトルミネセンススペクトルではっきりと分かる。低いドーピング濃度においてはモノマー発光が観察され、高いドーピング濃度においてはエキシマー発光が支配的である。10 % のドーピングに近いところで、これら錯体の両方について、きっちりとバランスが取れたモノマー-エキシマー発光が観察される。それより低いドーピング濃度においては、ホストによる大きな寄与が観察される。ドーピング濃度が増すに従って、高いドーピング濃度におけるより効率のよい励起子移動で、期待されるようにホストの寄与が減少する。

【 0 0 4 0 】

本発明の他の実施形態においては、モノマー/凝集体発光の比は、ホストマトリックス材料を変えることによって最適化する。例えば、単一のドーパント系（モノマー発光と凝集体発光の両方が同一ドーパントに由来する）において、発光層中のドーパントの会合の程度、及び、したがって発光状態の割合は、ホストマトリックス材料を修正することによって変化させることができる。理論に制約されないで言えば、ドーピングしたフィルムの成長の間に、ホストマトリックス中でドーパントの凝集体とそれらの分散物が競合する過程が存在する。ホストマトリックスが良溶媒として作用する場合は、ドーパントは、モノマー種が多くなるように、フィルム中により均一に分散するであろう。溶媒和が貧弱なホストマトリックスは、モノマードーパントを有効に分散させることなくドーパントの凝集体をもたらすであろう。したがって、溶媒和性のよいホストは、与えられたドーパント濃度において凝集体種に比較してモノマー種を多くする。双極子モーメント、会合エネルギー、及び、結晶化度などの他の物理特性を含むホストマトリックス材料の種々の特性が、特定のドーパントに対するその溶媒特性を決めるのに重要である。

【 0 0 4 1 】

他の代表的な実施形態においては、素子を、1つがモノマー状態で励起された状態から青色の光を発光するように2つの異なる発光材料から調製する。他のドーパントは、幅広の

10

20

30

40

50



黄色の発光をもたらしてエキシマー状態から発光する。例えば、この構想を実証するために調製した素子は、どんなドーピング濃度でもエキシマー状態を形成しない青色発光性の八面体の I r 錯体、F I r p i c を利用した。その素子に使用した他のドーパントは、面状の P t 錯体、F P t であり、それは、低いドーピング濃度であっても効率的にエキシマー状態を形成する。そのドーパントのそれぞれを 6 % で存在させた場合、得られたエレクトロルミネセント発光は、F I r p i c (モノマー) と F P t エキシマーのほぼ等しい寄与により構成されていた。

#### 【 0 0 4 2 】

可視スペクトルの低エネルギー部分をまたぐ幅の広い発光を提供するために励起錯体発光材料を使用するときにはいつも、その素子の発光領域は、励起錯体発光材料及びモノマー発光材料から構成される。モノマー及びエキシマーを含むルミネセント材料は、蛍光発光又はりん光により発光する。そのモノマー発光材料は、可視スペクトルの高エネルギー（例えば、青又は緑）で発光するものが好ましい。励起錯体発光材料は、可視スペクトルの低エネルギー部分をまたぐ幅の広い発光を提供する。この励起錯体の状態には吸収はなく、そのためモノマー発光材料から励起錯体のエネルギー移動は、極微である。したがって、素子を、例えば、1 つがマトリックス材料と励起錯体を形成し、1 つが形成しない 2 つの青色発光りん光材料により調製する場合は、白色の素子が調製され得る。その励起錯体は、黄色の発光ができ、その励起錯体は、基底状態の吸収がないので（吸収の振動子強度がゼロであり、そのためフェルスター半径 = 0）、非励起錯体形成ドーパントからエネルギーを捕獲しないであろう。したがって、青対黄色の発光の比はその 2 つの発光材料の比を変化させることによって、青色発光材料から黄色発光材料への複雑なエネルギー移動なしで容易に調整することができる。2 つのそのような材料の例は、F I r p i c と F P t である。I r 錯体は、励起錯体を形成せず、P t 錯体は、T A Z マトリックス中で黄色の励起錯体を形成する。それら 2 つの素子のエレクトロルミネセンススペクトル及びそれらを合わせたものを、図 1 に示す。I r に基づく素子は、6 % の外部効率のピークを有しており、P t に基づく素子（励起錯体発光）は、4 % の外部効率を有する。2 つの光源を合わせたものは、最高の照明源のいくつかに匹敵する 8 2 の C R I を有する白色光源を生じている。

#### 【 0 0 4 3 】

凝集体発光には含まれない発光材料であるモノマー発光材料は、高エネルギー（例えば青色）のルミネセント材料の中から選ぶことができる。そのモノマー発光材料は、一般的には、特定の濃度において凝集体を形成するために固体状態における必要な近接を防ぐための十分な立体的な嵩を有するルミネセント化合物である。好ましいモノマー状発光材料は、八面体配位構造を持つか、又は四角な面状構造をもち、凝集体形成を防ぐ十分な立体的嵩の配位子を有する有機金属遷移金属錯体を含む。

#### 【 0 0 4 4 】

本発明の素子に使用するりん光材料は、一般的には有機金属化合物である。そのりん光材料は、それぞれ参照によりそっくりそのまま本明細書に組み込まれている、2001 年 6 月 18 日出願の同時係属米国特許出願第 08 / 980, 986 号、及び 2001 年 10 月 16 日出願の同第 09 / 978 455 号に教示されている有機金属化合物から選択することができる。

#### 【 0 0 4 5 】

種々の化合物が、H T L 材料又は E T L 材料として使用されている。E T L 材料としては、特に、C. A d a c h i 等、A p p l. P h y s. L e t t.、v o l. 77、904 (2000) に開示されている、アリール置換オキサジアゾール、アリール置換トリアゾール、アリール置換フェナントロリン、ベンゾキサゾール又はベンズチアゾール化合物、例えば、1, 3-ビス (N, N-*t*-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール (O X D-7) ; 3-フェニル-4-(1'-ナフチル)-5-フェニル-1, 2, 4-トリアゾール (T A Z) ; 2, 9-ジメチル-4, 7-ジフェニルフェナントロリン (バトクプロイン又は B C P) ; ビス (2-(2-ヒドロキシフェニル)-ベンゾキサ

10

20

30

40

50

ゾラート) 亜鉛; 又はビス (2 - (2 - ヒドロキシフェニル) - ベンズチアゾラート) 亜鉛が挙げられる。他の電子輸送材料としては、(4 - ビフェニル) (4 - t - ブチルフェニル) オキシジアゾール (PDB) 及びアルミニウムトリス (8 - ヒドロキシキノラート) (Alq3) が挙げられる。

#### 【0046】

正孔輸送層の材料は、陽極から素子の発光領域まで正孔を輸送するために選択する。HTL材料は、ほとんど高い正孔移動度 ( $\sim 10^{-3} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ ) を示す種々の形態のトリアールアミンからなる。正孔輸送層として適する材料の1例は、正孔移動度が約  $5 \times 10^{-4} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$  の4, 4'-ビス [N - (ナフチル) - N - フェニル - アミノ] ビフェニル ( $\alpha$ -NPD) である。他の例としては、N, N'-ビス (3 - メチルフェニル) - N, N'-ジフェニル - [1, 1'-ビフェニル] 4, 4'-ジアミン (TPD) 、4, 4'-ビス [N - (2 - ナフチル) - N - フェニル - アミノ] ビフェニル ( $\beta$ -NPD) 、4, 4'-ビス [N, N' - (3 - トリル) アミノ] - 3, 3'-ジメチルビフェニル (M14) 、4, 4', 4'' - トリス (30 - メチルフェニルフェニルアミノ) トルフェニルアミン (MTDATA) 、4, 4'-ビス [N, N' - (3 - トリル) アミノ] - 3, 3'-ジメチルビフェニル (HMTPD) 、3, 3'-ジメチル - N<sup>4</sup>, N<sup>4</sup>, N<sup>4'</sup>, N<sup>4'</sup> - テトラ - p - トリル - ビフェニル - 4, 4'-ジアミン (R854) 、N, N', N'' - 1, 3, 5 - トリカルバゾロイルベンゼン (tCP) 、4, 4' - N, N' - ジカルバゾール - ビフェニル (CBP) 等が挙げられる。さらなる適当な正孔輸送材料が当技術分野では知られており、正孔輸送層に適する可能性のある材料の例は、参照により本明細書に組み込まれている米国特許第5, 707, 745号に見出すことができる。

#### 【0047】

上で述べた小分子に加えて、マトリックスは、ポリマー及びポリマー混合物を含むことができる。一実施例においては、発光性材料 (1つ又は複数) を、遊離の分子として、すなわち、ポリマーに結合しないで、ポリマー「溶媒」中に溶解する。マトリックス材料として使用するのに好ましいポリマーは、ポリ (9 - ビニルカルバゾール) (PVK) である。別の実施形態においては、その発光材料は、ポリマーの繰返し単位の一部、例えば、Dow社のプロフルオレン材料である。蛍光発光材料及びりん光発光材料の両方をポリマー鎖に付加し、OLEDを作製することが可能である。ポリマーマトリックスを含む素子の層は、一般的にはスピンコーティングで付着させる。

#### 【0048】

発光層用の好ましいホストマトリックス材料としては、カルバゾールビフェニル (CBP) 、及びその誘導体、N, N'-ジカルバゾロイルベンゼン、及びその誘導体、並びにN, N', N'' - 1, 3, 5 - トリカルバゾロイルベンゼン、及びその誘導体が挙げられる。誘導体としては、1つ又は複数の、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、CN、CF<sub>3</sub>、CO<sub>2</sub>アルキル、C(O)アルキル、N(アルキル)<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub>、O - アルキル、ハロ等で置換されている上記の化合物が挙げられる。発光層用として特に好ましいホストマトリックス材料としては、4, 4' - N, N' - ジカルバゾール - ビフェニル (CBP) 、N, N' - meta - ジカルバゾロイルベンゼン (mCP) 、及びN, N', N'' - 1, 3, 5 - トリカルバゾロイルベンゼン (tCP) が挙げられる。CBPは、2.56 eV (484 nm) の高い三重項エネルギー、及び同時二極性の電荷輸送特性など、それをりん光ドーパント用の優れたホストにするマトリックス材料としての多数の重要な特性を有している。

#### 【0049】

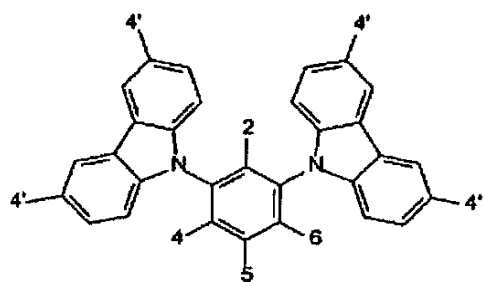
CBPの生の薄膜は、簡単に結晶化する。小分子 (発光性ドーパントなど) をCBPにドーピングすると、そのフィルムを無定形又はガラス状の形態で安定化し、それは長期間安定である。他方mCPは、ドーピングしない時でも安定なガラス状物質を形成する。素子の稼働中の結晶化は、素子の破損をもたらす可能性があるため、避ける。ドーピングしない場合でも安定なガラス状物質を形成する材料を持つことは、結晶化の過程が起こる見込みがよ

り少ないので有利である。与えられた材料のガラス状物質形成能力の評価に用いる測定基準は、そのガラス転移温度、 $T_g$ である。この温度は、ガラス状材料の熱安定性を特徴付け、したがって、高い $T_g$ が、OLED材料にとって望ましい。 $T_g$ において、大きな熱膨張が一般的には起こり素子の破損に導く。mCPは、65℃の $T_g$ 値を有する。この数値は、素子の製造には許容できるが、可能性のある最長寿命の素子の作製にはさらに高い $T_g$ が望ましい。 $T_g$ を上げることは、フェニル基及びポリフェニル基、並びに類似のアリール基などの大きくて堅い基を分子に付加することによって容易に成し遂げられる。このフェニル付加／置換は、しかしながら、三重項エネルギーを低下させないやり方で行うべきであって、さもないと、そのホスト材料が、青色又は白色の発光素子用に適するものでなくなってしまう。例えば、カルバゾール単位自体（例えば、化合物Iの4'の位置）にフェニル基を付加すると、一般に三重項エネルギーを低下し、そのmCP誘導体を青色又は白色素子にはあまり適さないものにする。

10

【0050】

【化1】



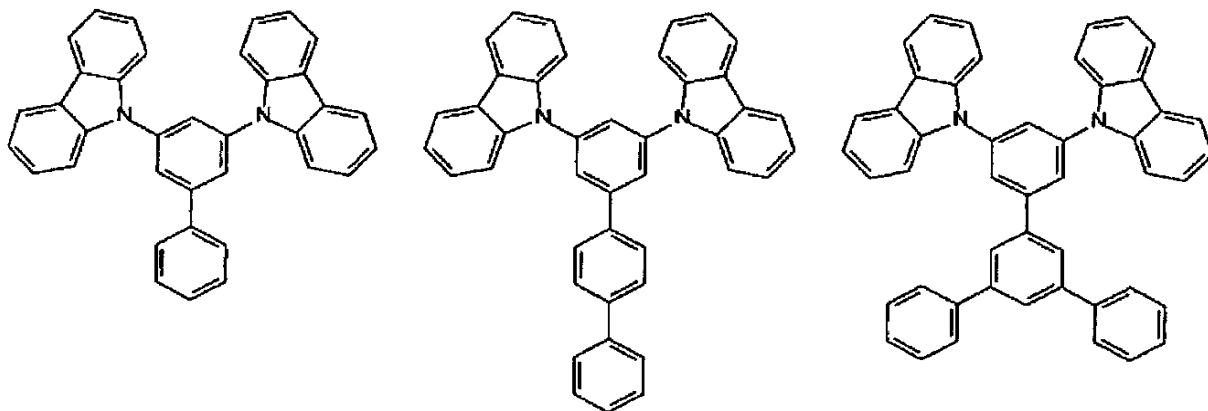
(I)

20

化合物Iの2、4、5、又は6の位置へのフェニル基又はポリフェニル基の置換は、三重項エネルギーの大きな変化をもたらす見込みが最も少ない。これらの置換によって、その材料の $T_g$ が一般に増大し、それらを寿命の長いOLEDのより優れた材料にする。そのような化合物の例としては、限定はしないが、

30

【化2】



40

及びそれらの誘導体が挙げられる。

【0051】

適当な電極（すなわち、陽極及び陰極）材料としては、電気接点に接続している、金属、合金、又はITOなどの導電性酸化物など、伝導性材料が挙げられる。電気接点の付着は、蒸着又はその他の適当な金属付着技術によって成し遂げられる。これらの電気接点は

50

、例えば、インジウム、マグネシウム、白金、金、銀、又は  $Ti/Pt/Au$ 、 $Cr/Au$  若しくは  $Mg/Ag$  などの組合せから作製することができる。

【 0 0 5 2 】

上端の電極層（すなわち陰極又は陽極、一般的には陰極）、つまり、基板から最も離れた  $OLED$  の面上の電極を付着する時は、有機層に対する損傷を避けなければならない。例えば、有機層をそのガラス転移温度より上まで加熱してはならない。上端の電極は、実質的に基板と直角の方向から付着させるのが好ましい。

【 0 0 5 3 】

陽極としての機能を果たす電極は、好ましくは、高い仕事関数金属（ $\geq 4.5 eV$ ）、又は、インジウムスズ酸化物（ $ITO$ ）、亜鉛スズオキシド、又はその他同類のものなど 10、透明な導電性酸化物を含む。

【 0 0 5 4 】

好ましい実施形態において、陰極は、好ましくは、金属層などの低い仕事関数の電子注入金属である。陰極金属が有する仕事関数は、約 4 電子ボルト未満であることが好ましい。金属陰極層は、陰極層が不透明である場合は、かなり厚めの金属層からなっているもよい。陰極を透明にしたい場合は、薄い低仕事関数の金属を、 $ITO$  などの透明な導電性酸化物と組み合わせて使用することができる。そのような透明陰極は、厚さが  $50 \sim 400 \text{ \AA}$ 、好ましくは約  $100 \text{ \AA}$  の金属層を有する。 $LiF/Al$  などの透明陰極もまた使用可能である。

【 0 0 5 5 】

20

上端の発光素子用としては、それぞれ参照により本明細書に組み込まれている、米国特許第 5,703,436 号、又は同時係属米国特許出願第 08/964,863 号、及び同第 09/054,707 号に開示されているような透明陰極を使用することができる。透明陰極は、 $OLED$  が、少なくとも約 50 % の光の透過を有するように光透過率特性を有する。透明陰極は、 $OLED$  が、少なくとも約 70 %、より好ましくは、少なくとも約 85 % の光の透過を可能にする光透過率特性を有するのが好ましい。

【 0 0 5 6 】

本発明の素子は、さらなる層、例えば、励起子障壁層（ $EBL$ ）、正孔障壁層（ $HBL$ ）、又は正孔注入層（ $HIL$ ）などを備えることができる。本発明の一実施形態は、参照によりそっくりそのまま本明細書に組み込まれている米国特許第 6,097,147 号に 30 開示されているような素子全体の効率を改善するように励起子の拡散をさえぎる励起子障壁層を使用する。

【 0 0 5 7 】

特に高エネルギー（青色）のりん光発光材料を有する素子において、発光層から正孔輸送層への励起子漏洩の電子を防ぐために、電子／励起子障壁層を、発光層と  $HTL$  の間に 40 入れることができる。高エネルギーのりん光ドーパントは、輸送材料及びホスト材料のそれに近い高いエネルギーの  $LUMO$  準位を持つ傾向がある。ドーパントの  $LUMO$  準位が  $HTL$  材料の  $LUMO$  エネルギーに近づいた場合、電子は、 $HTL$  に漏洩し得る。同様に、そのドーパントの発光エネルギーが、 $HTL$  の吸収エネルギーに近づいたときは、 $HTL$  への励起子の漏洩が起こり得る。それゆえ、電子／励起子障壁層を、発光層と  $HTL$  の間に導入することにより素子特性を改良することができる。効率のよい電子／励起子障壁材料は、 $HTL$  への励起子漏洩を防ぐ大きなエネルギー差と、電子を封鎖する高い  $LUMO$  準位と、 $HTL$  のそれより高い  $HOMO$  準位とを有する。電子／励起子障壁層で用いるための好ましい材料は、 $f$  a c トリス（ $1$ －フェニルピラゾラトーン- $N$ 、 $C^2$ ）イリジウム（ $III$ ）（ $Irppz$ ）である。

【 0 0 5 8 】

本発明のさらに他の実施形態においては、正孔注入層を、陽極層と正孔輸送層の間に存在させることができる。本発明の正孔注入材料は、その陽極から正孔注入材料への効率のよい正孔注入を提供するように、陽極表面を平面化若しくは濡らす材料として特徴付けることができる。本発明の正孔注入材料は、さらに、隣接する  $HIL$  層の片側の陽極層及び 50

そのH I Lの反対側の、発光材料をドープした電子輸送層と、それらの相対I Pエネルギーにより明確になる、有利に調和するH O M Oエネルギー準位を持つという特徴がある。各材料の最高占有分子軌道（H O M O）は、そのイオン化ポテンシャル（I P）に対応する。最低非占有分子軌道（L U M O）は、吸収スペクトルから測定される、I Pと光学的エネルギー差を加えたものに等しい。完全に組み立てた素子におけるエネルギーの相対的な配列は、例えば吸収スペクトルから予測したものとは幾分異なるかもしれない。

## 【 0 0 5 9 】

H I L材料は、依然として正孔輸送材料であるが、一般的にO L E Dの正孔輸送層で使用される従来の正孔輸送材料とは区別され、上記のH I L材料は、従来の正孔輸送材料の正孔移動度より実質的に低い正孔移動度を有する。例えば、m - M T D A T Aは、I T Oから例えば $\alpha$  - N P D又はT P DからなるH T Lへの正孔の注入の促進に有効であることが確認されている。おそらく、H I Lは、H T LのH O M O準位 / I T Oのオフセットエネルギーの減少によるか、又はI T O表面の濡れによって、正孔を効率よく注入する。H I L材料のm - M T D A T Aは、 $\alpha$  - N P D及びT P Dのそれぞれ約 $5 \times 10^{-4} \text{ cm}^2 / \text{V s e c}$ 及び $9 \times 10^{-4} \text{ cm}^2 / \text{V s e c}$ 正孔移動度と比較して、約 $3 \times 10^{-5} \text{ cm}^2 / \text{V s e c}$ の正孔移動度を有するものと考えられる。したがって、m - M T D A T A材料は、通常使用されるH T L材料の $\alpha$  - N P D及びT P Dより一桁以上低い正孔移動度を有する。

## 【 0 0 6 0 】

他のH I L材料としては、フタロシアニン化合物、例えば銅フタロシアニン、又は、ポリマー物質、例えばポリ- 3, 4 - エチレンジオキシチオフエン（P E D O T）若しくはポリ（エテン- ジオキシチオフエン）：ポリ（スチレンスルホン酸）（P E D O T : P S S）を含むさらに他の材料が挙げられ、それらは、陽極からH I L材料へ、続いてH T Lへの正孔の注入を促進するのに有効である。

## 【 0 0 6 1 】

本発明のH I Lの厚さは、陽極層の表面を平面化若しくは濡らす助けとなるために十分に厚いことが必要である。例えば、非常に平滑な陽極表面に対しては、わずか10 nmのH I Lの厚さで許容できる。しかしながら、陽極表面は、非常に粗い傾向があるため、ある場合には、50 nmまでのH I Lの厚さが必要となり得る。

## 【 0 0 6 2 】

本発明による基板は、不透明若しくは透明、硬直若しくは柔軟、及び／又はプラスチック、金属、若しくはガラスであり得る。ここに列挙する厚さ範囲に限定はしないが、基板は、柔軟なプラスチック基板又は金属箔基板として存在する場合10 mmの薄さ、あるいは硬直な透明若しくは不透明基板として存在する場合、あるいはその基板がシリコン製の場合は、実質的にそれより厚いこともあり得る。

## 【 0 0 6 3 】

本発明のO L E D及びO L E D構造物は、望まれる効果によって、さらなる材料又は層、例えば、保護層（加工工程の間ある材料を保護する）、絶縁層、波動を一定の方向に誘導する反射層、電極及び有機層を覆ってこれらの層を環境から保護する保護キャップ等の場合によって含有する。絶縁層及び保護キャップについての説明は、例えば、参照により本明細書に組み込まれている米国特許第6, 013, 538号に含まれている。

## 【 0 0 6 4 】

高いC R I値がしばしば望ましいが、本発明の素子は、他の色も同様に提供する光源を提供するために使用することができる。白熱電球は、純粋な白よりも実際は少し黄色である。本明細書に記載したように、モノマーエキシマー対凝集体エキシマーの比を変えることによって、その結果得られる素子の色は、例えば、白熱電球から発光される光を模倣することができる。ドーパントの濃度、ドーパントの立体的な嵩、及び発光層に使用されるホスト材料を調整することによって、不飽和（単色ではない）色をした発光を提供する素子を組み立てることが可能である。

## 【 0 0 6 5 】

OLED層を逆にした配列であるか、又はさらなる他の設計変更を使用するかによって、存在する層のタイプ、数、厚さ、順序等の相当の変化があり得る。当業者であれば、本明細書で説明し図解した本発明の実施形態に対して様々に修正できることを認識できよう。そのような修正は、本発明の精神及び範囲に含まれることを意味する。すなわち、本発明を一定の実施形態に照らして詳細に説明してきたが、当業者であれば、本発明の他の実施形態が請求項の精神及び範囲の中に存在することを認識するはずである。

## 【0066】

入手可能な場合は、溶剤及び試薬は、アルドリッチケミカルカンパニー (Aldrich Chemical Company) から購入した。試薬は最高の純度のものであり、受け取ったままのものを使用した。

10

## 【0067】

配位子2-(2,4-ジフルオロフェニル)ピリジン ( $F_2ppy$ ) を、2,4-ジフルオロフェニル臭素酸及び2-ブロモピリジン (Aldrich) の鈴木カップリングにより調製した。 $Pt(II) \mu$ -ジクロロ橋かけ二量体 [ $(F_2ppy)_2Pt(\mu-Cl)_2Pt(F_2ppy)_2$ ] を、Lewisの修正法 (Lohse, O. 等, Synlett, 1999, 1, 45~48) により調製した。その二量体を、3当量のキレートジケトン配位子及び10当量の  $Na_2CO_3$  で処理した。2,6-ジメチル-3,5-ヘプタンジオン、及び6-メチル-2,4-ヘプタンジオンは、TCIから購入した。3-エチル-2,4-ペンタンジオンは、Aldrichから購入した。溶媒を減圧下で除去し、化合物をクロマトグラフィーにより精製した。生成物をジクロロメタン/メタノールから再結晶し、次いで昇華させた。

20

## 【0068】

$Irppz$  を、 $Ir(acac)_3$  (3.0 g) 及び1-フェニルピラゾール (3.1 g) を100 mlのグリセロールに溶解し、不活性雰囲気の下で12時間還流して調製した。冷却後生成物を濾過によって単離し、いくつかの蒸留水、メタノール、エーテル及びヘキサンで洗浄し、次いで真空乾燥をした。粗製品を次いで220~250℃の温度勾配の中で昇華させて浅黄色の生成物を得た (収率58%)。

## 【0069】

mCPを、パラジウム触媒を用いるハロゲン化アリールとアリールアミンの交差カップリングにより調製した (T. Yamamoto, M. Nishiyama, Y. Koie, Tet. Lett., 1998, 39, 2367~2370)。

30

## 【実施例1】

## 【0070】

電界りん光エキシマーWOLEDを、20-W/sqのシート抵抗を有するイリジウムスズ-オキシド (ITO) 層を予め塗布してあるガラス基板上に成長させた。有機層を付着させる前に、基板を超音波溶剤浴中で脱脂し、次いで酸素プラズマを用いて20W及び150ミリトルで処理した。OLED漏洩電流を減らすため及び製作の歩留まりを上げるために使用するポリ (エチレン-ジオキシチオフェン) : ポリ (スチレンスルホン酸) (PEDOT:PSS) を、ITO上に4,000rpmで40秒間スピンし、続いて真空中120℃で15分間焼き付け、ほぼ40nmの厚さを得た。正孔輸送材料及びホスト材料、並びに2つのドーパントを、標準操作手順 (Lamansky, S. 等, Inorg. Chem., 40, 1704~1711, 2001参照) により調製し、熱勾配真空昇華により精製した。分子状有機層を、真空を壊さずに、 $<8 \times 10^{-7}$  トルの底面圧で、熱蒸着によって連続的に付着させた。

40

## 【0071】

蒸着は、30nmの厚さの4,4'-ビス [N-(ナフチル)-N-フェニル-アミノ] ビフェニル ( $\alpha$ -NPD) 正孔輸送層 (HTL) から始め、次に両方共6重量%で4,4'-N,N'-ジカルバゾール-ビフェニル (CBP) のホストにドーブした青色の発光をするりん光体  $FIr(pic)$  及び  $FPt(acac)$  からなる30nmの厚さの発光領域を続けた。最後の有機層として、バクプロイン (BCP) を50nm蒸着した。

50

この層は、正孔及び励起子障壁層として、及び電子輸送媒体として役立つ。

【 0 0 7 2 】

有機層を蒸着した後、その試料を蒸発チャンバーから $N_2$ を充填した $H_2O$ 及び $O_2$ の含有量が $\leq 1 \text{ ppm}$ であるグローブボックスに移した。その試料に直径 $1 \text{ mm}$ の穴のあるマスクを貼った後、それを第2の真空チャンバー ( $< 10^{-7}$  トル) に移し、そこでマスクを通して陰極用の金属 ( $5 \text{ \AA}$  の $LiF$ の後に $70 \text{ nm}$ の $Al$ ) を蒸着した。その試料が空気にさらされたのは試験中だけである。その素子の断面図を図6に示す。

【 0 0 7 3 】

素子の発光領域で使用する材料のフォトルミネセンス発光 (PL) 及び励起 (PLE) スペクトルを調査することによってWLEDの設計をするのが便利である。それぞれ厚さが $1000 \text{ \AA}$ の3つをドーブしたフィルムとドーブしてない「対照」CBPフィルムを、別々に溶剤できれいにした水晶基板に熱蒸着によって成長させた。そのフィルムのPLスペクトル及びPLEスペクトルは、Photon Technology International QuantaMaster 蛍光発光システムを用いて採取した。図5は、そのフィルム及びそれらから得るPLのCIE座標を列挙している。

【 0 0 7 4 】

図5は、フィルム1～4のPLスペクトル (実線) 及びPLEスペクトル (白丸) を示している。フィルム1は、CBPの、 $\lambda = 390 \text{ nm}$ にピークがあるPLスペクトル及び $\lambda = 220 \sim 370 \text{ nm}$ の間の対応するPLEを示す。CBPのPLEは、 $\lambda = 300 \text{ nm}$ のところに肩と、 $\lambda = 350 \text{ nm}$ のところにメインピークを有する。そのCBPのPLEピークは $\lambda = 300 \sim 350 \text{ nm}$ における吸収ピークに相当する (図6の挿入図の矢印)。これら2つのCBPの特徴は、CBPをホストとして使用したすべてのフィルムのPLEスペクトルに現れており、それゆえ、それがすべてのフィルムにおける主な吸収種であり、エネルギーは、CBPからFPt (aac) 及びFIr (pic) の両方に、発光がこれらの分子から起こるように効率よく移動しているはずである。

【 0 0 7 5 】

フィルム2のPLスペクトルは、CBP及びFPt (aac) のモノマー発光のみに合致する帯域を示している。CBP発光は、 $\lambda = 390 \text{ nm}$ のところであり、FPt (aac) モノマー発光は、 $\lambda = 470 \text{ nm}$ 及び $\lambda = 500 \text{ nm}$ のところにピークを有する。CBP中のFPt (aac) で観察されるスペクトルは、希薄溶液の同一分子と非常によく似ている。 $< 1$  重量%において、無作為に分布したFPt (aac) 分子は、平均して $30 \text{ \AA}$ 離れており、有効なエキシマーの形成を阻止している。フィルム2における幅の広い長波長のピークの欠如は、励起錯体がCBPとFPt (aac) の間に形成されないことを示唆している。すなわち、励起錯体がこれらの部分の間にも形成されれば、FPt (aac) -CBP錯体からの励起錯体発光が、たとえ最も軽度にもドーブした試料においても現れるであろう。

【 0 0 7 6 】

FPt (aac) のドーピング濃度が $\sim 7$  重量% (フィルム3) まで増えると、 $\lambda = 470 \text{ nm}$ 及び $\lambda = 500 \text{ nm}$ の特徴的なモノマー発光と共に $\lambda = 570 \text{ nm}$ のところにオレンジ赤のピークの、強いエキシマー発光が観察される。それよりドーピング濃度が高くなるとCBP蛍光発光は完全に消滅するようになる。フィルム3について、 $\lambda = 570 \text{ nm}$ においてFPt (aac) 発光の寿命が、 $\lambda = 470 \text{ nm}$ における $8.3 \text{ ms}$ と比較して $t = 7.2 \text{ ms}$ と測定されたことは、FPt (aac) 錯体にエキシマーが形成されたこととも合致する。

【 0 0 7 7 】

FPt (aac) の1重量%と7重量%の間のドーピングは、ドーパントからのモノマー発光及びエキシマー発光が、同時に起こることと合致するスペクトルをもたらす。3重量%～4重量%のドーピング濃度でモノマーとエキシマーのラインのバランスが取れて、白色発光がもたらされる。このフィルム組成は、原則的には白色OLEDを作製するために使用できるが、妥当性のある効率をもち、CBPの蛍光発光のないスペクトルを与え

る素子のためには、ドーピング濃度が低すぎる。

【0078】

フィルム4は、6重量%のF I r ( p i c ) 及び6重量%のF P t ( a c a c ) でドーブしたC B P からなる。ここで、C B P 発光はP L 中に存在しないが、P L E スペクトルが、なおもそれが主たる吸収種であり、エネルギーが、F P t ( p i c ) 及びF P t ( a c a c ) の両方に効率よく移動することを示している。二重にドーブしたフィルムのP L 発光は、図6に示したW O L E D のエレクトロルミネセンス ( E L ) と類似している。

【0079】

二重にドーブした系におけるエネルギー移動の過程は、3つの有機化合物の最高占有分子軌道 ( H O M O ) 及び最低非占有分子軌道 ( L U M O ) ( 図7、右下の挿入図) を参考10  
にすることによって理解することができる。C B P からF I r ( p i c ) への三重項エネルギーの移動は、A d a c h i , C . 等によって、A p p l . P h y s . L e t t . 79、2082~2084 ( 2001 ) に記載されている吸熱を伴う過程によって起こる。F P t ( a c a c ) 及びF I r ( p i c ) の両方の ( 5 . 8 ± 0 . 1 e V ) のH O M O エネルギー準位、及び ( 3 . 2 ± 0 . 1 e V ) のL U M O エネルギー準位の同じ位置を仮定すれば、類似の吸熱を伴うエネルギー移動の経路がC B P 及びF P t ( a c a c ) に対して期待できる。その2つのドーバントの三重項準位間の共鳴エネルギー移動もまたそれらが高濃度でC B P マトリックス中に存在するので見込まれる。しかしながら、F I r ( p i c ) からそのエキシマーへの直接のエネルギー移動は、そのエキシマーが、基底状態の吸収がゼロであり、青色の発光中心から黄色の発光中心へのエネルギーのカスケードを防ぐ20  
ために起こり得ない。このことが基本的にこれらの分子の励起状態の結合度を下げ、所望の色バランスを得るドーピングの容易な最適化を可能にする。

【0080】

W O L E D からの光出力は、ニューポートパワーメータ ( N e w p o r t P o w e r M e t e r ) 及び目盛つきシリコン光ダイオードを用いて測定し、図7の左側の挿入図に示した電流密度-電圧特性を用いて $\eta_{x,1}$ を計算した。均等拡散光度 ( l a m b e r t i a i n t e n s i t y ) プロファイルは、当然 $\eta_{x,1}$  ( 図7 ) 及び輝度を計算する。ここで、J が、 $1 \times 10^{-3} \text{ mA/cm}^2$  と  $10 \text{ mA/cm}^2$  の間で $\eta_{x,1}$ は、 $\geq 3.0\%$ である。J >  $300 \text{ mA/cm}^2$  におけるロールオフは、試料の加熱及び三重項-三重項消滅の影響を受ける。このW O L E D は、 $(9.2 \pm 0.9) \text{ cd/A}$  に相当する最大 $\eta_{x,1} = (4.0 \pm 0.4)\%$ と、 $16.6 \text{ V}$  で  $31,000 \pm 3,000 \text{ cd/m}^2$  の輝度と、 $\eta_p = (4.4 \pm 0.4) \text{ lm/W}$  と、78のC R I を有する。30

【0081】

F P t ( a c a c ) の生のフィルムは、それぞれ $\lambda = 470 \text{ nm}$  及び $\lambda = 600 \text{ nm}$  において $t = 4.8 \text{ ms}$  及び $t = 5.2 \text{ ms}$  の寿命が測定された。それゆえ、電流密度が増すに従いF P t ( a c a c ) エキシマー状態は、モノマー及びF I r ( p i c ) と比較して飽和状態となり、青色発光が増すようになる。そのスペクトル変化は、C I E 座標では ( 0 . 40 , 0 . 44 ) から ( 0 . 35 , 0 . 43 ) まで小さい変化をもたらす。

【実施例2】

【0082】

F P t 3 により8%、10%、12%のドーピング濃度でO L E D を調製した。素子構造は、I T O / N P D ( 400 Å ) / I r ( p p z )<sub>3</sub> ( 200 Å ) / C B P - F P t 3 ( 300 Å ) / B C P ( 150 Å ) / A l q<sub>3</sub> ( 200 Å ) / M g - A g の構成とした。その3つの素子の電流電圧特性は、類似していたが、ドーピング濃度が増すに従い低電圧において漏洩電流が徐々に少なくなった。C B P ホストの発光は、どのドーピング濃度でも観察されず、F P t 3 ドーバントがC B P マトリックス中に形成された励起子のすべてを効率よく捕捉していることを示した。C B P 中の励起子の形成は、正孔-電子再結合のあり得る結果であるが、正孔又は電子は、F P t 3 分子に捕捉され得るので、直接ドーバントに再結合が起こる可能性もまたある。後者の過程は、マトリックス材料、すなわちこの場合はC B P からのエネルギー移動を必要としないで、ドーバント上への励起子の形成40



がもたらされるであろう。I r ( p p z ) , 電子障壁層は、ドーパントのモノマー-エキシマー発光に加えてNPD発光を引き起こすNPD層への電子の漏洩を防ぐために必要であった。3つの素子は、すべて3ボルトと4ボルトの間のターンオン電圧を示し、4, 000 Cd/m<sup>2</sup>と10, 000 Cd/m<sup>2</sup>の間の最大輝度を得る。その素子のスペクトルは、電圧が上がっても変化はごくわずかである。すなわち、モノマー対エキシマー比は、電圧又は電流密度によってあまり影響されない。10%及び12%をドーブした素子は、それぞれ4%及び3.5%のピーク効率を与える。10%及び12%をドーブした素子は、また、それぞれ(1 Cd/m<sup>2</sup>で)81 m/W及び6.51 m/Wの非常に良好な出力効率を与える。

### 【実施例3】

10

#### 【0083】

F P tの重量%を変化させてドーブしたm C Pの薄膜を、ガラス基板上に2つの材料を共蒸着させることにより調製した。ある範囲の濃度でm C P中にドーブしたF P tのスペクトルを、図20に示してある。m C P中にドーブしたF P tのモノマー及び凝集体の状態の発光最高値の波長は、C B P中のF P tのそれと同じである。バランスのよいモノマー/凝集体発光は、約15重量%のドーピング濃度のところで観察され、F P tをドーブしたC B Pフィルムから同等のモノマー/凝集体発光比を得るために必要な濃度のざっと3倍である。これは、m C Pが、F P tに対するより優れた溶媒であって、与えられた濃度でドーブしたm C Pフィルム中でより少ないF P t... F P t相互作用を生じることを示唆している。

20

#### 【0084】

ドーブしたC B Pのフィルムと対照的に、軽度ドーブしたm C Pフィルム(F P t < 1重量%)のフォトルミネセントスペクトルには、ホストの発光が観察されず、m C PからF P tへのエネルギー移動がC B PからF P tよりも効率がよりよいことを示している。C B Pの高い三重項エネルギー(りん光λ<sub>em</sub> = 460 nm)にもかかわらず、C B Pからここで使用するP t錯体のようなりん光ドーパントへのエネルギー移動は、吸熱のプロセスである。対照的にm C Pは、m C PからP t錯体ドーパントへのエネルギー移動をより効率のよい発熱過程にする、410 nmのところがピークとなるりん光スペクトルをもつ。ホストからドーパントへの一層効率のよいエネルギー移動は、観察される発光を消すために必要なドーパントの量に影響を及ぼすであろう。

30

#### 【0085】

C B P及びm C Pは、両方共低い双極子モーメント(およそ0.5 D)をもっており、そのため、ドーパントとホスト材料の間の静電的相互作用は類似しているものと予想される。このことは、ドーブしたm C Pフィルム及びC B Pフィルムに対するモノマー状態及び凝集体状態のスペクトルが、同じであるという観察と一致する。理論に制約されることなく言えば、ドーパントの溶解性の違いを生じさせるC B Pとm C Pの間の差異は、それらの分子構造と関係がある。平面状分子は、結晶化を促進し、ガラス状態の形成を妨げる高い会合エネルギーを有する。C B Pは、固体状態では概して平面状であるものと予想される。これは、ドーブしていないC B Pの薄膜が、ガラス基板又はITO基板に直接蒸着する場合直ぐに結晶化するというわれわれの観察と一致する。その高いC B Pの会合エネルギーが、モノマードーパントを締め出す傾向があって、適度のドーピング濃度での凝集体の形成を生じることができる。m C Pは、無機又は有機のいずれの基板上でも蒸着すると容易にガラス状物質を形成し、それが非平面状基底状態構造を有していることを示唆している。m C Pのガラス転移温度は、65℃である。隣接するカルバゾール基とフェニル環の間の立体的相互作用が、C B P及びm C Pの両方共、図21のエネルギーを最小にした構造のジオメトリーに見られるように、非面状の基底状態構造を有しているに違いないという予測を生む。C B Pを最小にした構造は、いくぶんか非面状に見えるが、示されている構造と面状の配座異性体の間の計算されたエネルギー差は、わずか18 kJ/molであることに注意することが重要である。対照的に、m C Pを平面化するのに必要なエネルギーは、35 kJ/molである。m C Pを平らにすることに対する大きな障壁の主要

40

50

な原因は、CBPにはない相互作用である隣接するカルバゾール間のH...Hの反発である。その構造の違いに基づいて、mCPによる四角な面状Ptドーパントの溶媒和の程度は、CBPのそれとは非常に異なるものと予想される。この交換が、CBP対mCPにおける与えられたドーピング濃度でのモノマー／凝集体比に著しく影響する。

【0086】

mCP中にドーブした1のフォトルミネセンススペクトルについてのCIE座標及び演色評価数(CRI)を表1に示す。

【0087】

【表1】

表 1

| 濃度<br>重量% | CIE X | CIE Y | CRI  |
|-----------|-------|-------|------|
| 0.1%      | 0.15  | 0.28  | -    |
| 0.5%      | 0.19  | 0.32  | -    |
| 4.5%      | 0.21  | 0.35  | 44.5 |
| 10%       | 0.27  | 0.39  | 59.7 |
| 15%       | 0.32  | 0.41  | 68.3 |
| 20%       | 0.32  | 0.39  | 73.2 |
| 25%       | 0.41  | 0.46  | 64.1 |
| 30%       | 0.41  | 0.45  | 69.2 |

10

20

4～10重量%の間の濃度が、白色(0.33, 0.33)に最も近いCIE座標を与え、一方最大のCRIは、15～20重量%の間で観察された。それより高い濃度において、CIE座標は、白熱灯のそれ(およそ、0.41, 0.41)に近い。それゆえ、1をドーブしたmCPに対しては、10～20重量%の濃度範囲を、WOLEDで使用するのに最適なものとして選択した。

【実施例4】

30

【0088】

NPD(400Å)/Irppz(200Å)/mCP:F Pt(16%300Å)/BCP(150Å)/Alq3(200Å)/LiF(10Å)/Al(1000Å)の構造で素子を作製した。CBPの代わりにmCPホストを使用することにより、素子の性能が著しく改善される。効率、電流－電圧特性、及びその素子のスペクトルを図23、24、及び25に示す。高いドーピング濃度及びmCPからドーパントへの改良されたエネルギー移動によって、低い明度レベル(1cd/m<sup>2</sup>)において6.4±0.6%(12.2±1.4lum/W、17.0cd/A)の最大量子効率、及び500cd/m<sup>2</sup>において4.3±0.5%(8.1±0.6lum/W、11.3cd/A)の量子効率が与えられた。これらのmCP/F PtのWOLEDによって実証された量子効率は、WOLEDについて報告された最高の量子効率である。量子効率は、電流密度を増すと他の素子でも見られるように減少するが、その減少は、他の大部分の電界りん光素子ほどは大きくない。

40

【実施例5】

【0089】

IrppzEBLを省いた以外(すなわち、NPD/mCP-F Pt/BCP/Alq3)は、実施例3と同様にOLEDを調製した。ELスペクトルには、NPD及びざっと2分の1に減少した量子効率の大きな寄与がある。(図24参照)。全体的に、Irppz電子／励起子障壁層は、OLED効率を増大し、スペクトルからNPDの発光を除去し、スペクトルの電圧への依存を無くする。

50

## 【 0 0 9 0 】

図 2 2 に示す m C P 素子及び C B P 素子のエネルギー準位の線図は、ドーパント / C B P L U M O 準位から N P D L U M O への電子の移動のためのバリアが、N P D から発光層への正孔注入バリアに相当することを図示している。H T L への電子 / 励起子の漏洩の除去は、W O L E D の効率及び色安定性の両方を改善するはずである。I r p p z 錯体は、りん光励起状態 ( 7 7 K において  $\lambda_{m.s.} = 414 \text{ nm}$ 、 $\tau = 15 \mu \text{sec}$  ) だけから発光する。この錯体の光学ギャップは、 $370 \text{ nm}$  (  $3.4 \text{ eV}$  ) における吸収スペクトルの低いエネルギー局在としてとらえた。この光学ギャップの推定値は、キャリアギャップの下限を表す。I r p p z は、流体溶液中  $0.38 \text{ V}$  ( 対フェロセン / フェロセニウム ) で可逆性酸化を示すが、DMF 中  $-3.0 \text{ V}$  に向う還元波は起こらず、 $> 3.4 \text{ eV}$  のキャリアギャップと合致する。I r p p z の H O M O エネルギーを紫外光電子分光法 ( U P S ) により測定し、 $5.5 \text{ eV}$  であることが判明した。キャリアギャップを概算するために、I r p p z の光学ギャップを用いて、I r p p z の L U M O が  $2.1 \text{ eV}$  であり、C P B 及びドーパント L U M O のどちらよりも十分上であるものと評価した。図 2 2 のエネルギースキームは、I r p p z が、優れた電子 / 励起子障壁層を作るに違いないことを示唆している。

## 【 0 0 9 1 】

本発明を、特定の実施例及び好ましい実施形態について説明したが、本発明はこれらの実施例及び実施形態に限定されないことが理解される。特に本発明は、種々様々な電子素子に応用することができる。本発明には、それゆえ、請求のように、本明細書に記載した特定の実施例及び好ましい実施形態からの当業者には明らかな変更も含まれる。

## 【 図面の簡単な説明 】

## 【 0 0 9 2 】

【 図 1 】 T A Z ( 励起錯体 ) 中の F P t 及び C B P ( ドーパントのみ ) 中の F I r p i c のエレクトロルミネセンススペクトル、並びに 2 つのスペクトルの和を示す図である。合わせたスペクトルは、単一の素子ではなく、モノマー発光材料及び励起錯体発光材料を使用して真の白色発光を実現する可能性を示すために 2 つの素子からの出力を算術的に組み合わせている。

【 図 2 】  $< 1\%$  F P t、及び  $> 6\%$  F P t でドーブした C B P フィルムのフォトルミネセンススペクトルを示す図である。 $1\%$  の負荷で、スペクトルはモノマー発光が優位を占める。 $6\%$  の負荷で、モノマーのシグナルは、依然存在するが、黄色のエキシマー発光に対しては小さい成分である。

【 図 3 】 素子 I T O / P E D O T ( 4 0 0 ) / N P D ( 3 0 0 ) / C B P : F I r p i c 6 % : F P t 6 % ( 3 0 0 ) / F I r p i c ( 5 0 0 ) / L i F ( 5 ) / A l ( 1 0 0 0 ) に対するいくつかの異なる電流レベルにおける E L スペクトルを示す図である。各スペクトルの C I E 座標を、凡例の中に示してある。この素子は、C R I 値が 7 0 の高さであってすべての電流密度において白く見える。

【 図 4 】 素子 I T O / P E D O T ( 4 0 0 ) / N P D ( 3 0 0 ) / C B P : F I r p i c 6 % : F P t 6 % ( 3 0 0 ) / F I r p i c ( 5 0 0 ) / L i F ( 5 ) / A l ( 1 0 0 0 ) に対する量子効率 ( 白丸 ) 及び出力効率 ( 白四角 ) のプロットを示す図である。電流密度 - 電圧のプロットが挿入されて示されている。この素子は、エキシマー発光が、モノマー発光と単一 O L E D 中で結合して白色光の発光を達成できることを実証している。

【 図 5 】 フィルム 1 ~ 4 のフォトルミネセンス発光 ( 実線 ) 及び励起スペクトル ( 白丸 ) を示す図である。フィルムは、 $1000 \text{ Å}$  の厚さを有しており、水晶基板上で成長させる。フィルム 1 は、C B P の、 $\lambda = 390 \text{ nm}$  にピークがある P L スペクトル及び  $\lambda = 220 \sim 370 \text{ nm}$  の間の対応する P L E を示す。C B P の P L E は、 $\lambda = 300 \text{ nm}$  のところに肩と、 $\lambda = 350 \text{ nm}$  のところにメインピークを有する。その C B P の P L E ピークは  $\lambda = 300 \sim 350 \text{ nm}$  における吸収ピークに相当する ( 図 6 の挿入図の矢印 ) 。これら 2 つの C B P の特徴は、C B P をホストとして使用したすべてのフィルムの P L E スペクトルに現れており、それゆえ、それがすべてのフィルムにおける主な吸収種であり、エ

エネルギーは、CBPからFPt (acac) 及びFIr (pic) の両方に、発光がこれらの分子から起こるように効率よく移動しているはずである。

【図6】素子ITO/PEDOT-PSS/NPD (30 nm) /CBP: FIrpic 6%: FPt 6% (30 nm) /BCP (50 nm) /LiFのいくつかの電流密度における標準化したエレクトロルミネセントスペクトルを、はっきりと見せるために縦にずらして示している図である。左上の挿入図は、水晶上の厚さ1000 ÅのCBPフィルムの吸収と波長の関係を示している。

【図7】素子ITO/PEDOT-PSS/NPD (30 nm) /CBP: FIrpic 6%: FPt 6% (30 nm) /BCP (50 nm) /LiFの外部量子及び出力効率対電流密度のプロットを示す図である。発光層は、CBP中にドーブした6重量%のFIr (pic) 及び6重量%のFPt (acac) からなる。左側の挿入図は、この素子の電流密度対電圧の特性を示している。右側の挿入図は、実線で示したCBPのエネルギー準位、FIr (pic) でドーブしたエネルギー準位及びFPt (acac) でドーブしたエネルギー準位 (点線) の線図を描いている。ここで、HOMOは、最高占有分子軌道の位置を示し、LUMOは、最低非占有エネルギー軌道の位置を示す。

【図8】FPtの濃度を変化させてドーブしたCBPフィルムのフォトルミネセンススペクトルを示す図である。

【図9】FPt 2の濃度を変化させてドーブしたCBPフィルムのフォトルミネセンススペクトルを示す図である。

【図10】FPt 3の濃度を変化させてドーブしたCBPフィルムのフォトルミネセンススペクトルを示す図である。

【図11】FPt 4の濃度を変化させてドーブしたCBPフィルムのフォトルミネセンススペクトルを示す図である。

【図12】FPt 3の様々な濃度でFPt 3をドーブしたOLED: ITO/NPD (400 Å) /Ir (ppz) 3 (200 Å) /CBP-FPt 3 (300 Å) /BCP (150 Å) /Alq 3 (200 Å) /Mg-Agに対する電流密度対電圧のプロットを示す図である。

【図13】FPt 3の様々な濃度でFPt 3をドーブした図12のOLEDのエレクトロルミネセントスペクトルを示す図である。

【図14】FPt 3の様々な濃度でFPt 3をドーブした図12のOLEDに対するCIE座標を示す図である。

【図15】FPt 3の様々な濃度でFPt 3をドーブした図12のOLEDに対する明度対電圧のプロットを示す図である。

【図16】FPt 3の様々な濃度でFPt 3をドーブした図12のOLEDに対する量子効率対電流密度のプロットを示す図である。

【図17】FPt 3の様々な濃度でFPt 3をドーブした図12のOLEDに対する電流密度の関数としての出力効率及び明度を示す図である。

【図18】化合物、白金 (II) (2-(4', 6'-ジフルオロフェニル) ピリジナト-N, C<sup>2'</sup>) (2, 4-ペンタンジオナト) (FPt、FPt (acac))、白金 (II) (2-(4', 6'-ジフルオロフェニル) ピリジナト-N, C<sup>2'</sup>) (2, 2, 6, 6-テトラメチル-3, 5-ヘプタンジオナト) (FPt 2)、白金 (II) (2-(4', 6'-ジフルオロフェニル) ピリジナト-N, C<sup>2'</sup>) (6-メチル-2, 4-ヘプタンジオナト) (FPt 3)、白金 (II) (2-(4', 6'-ジフルオロフェニル) ピリジナト-N, C<sup>2'</sup>) (3-エチル-2, 4-ペンタンジオナト) (FPt 4)、イリジウム-ビス (4, 6-F<sub>2</sub>-フェニル-ピリジナト-N, C<sup>2'</sup>) -ピコリナート (FIrpic)、fac-イリジウム (III) トリス (1-フェニルピラゾラト-N, C<sup>2'</sup>) (Irppz)、及びN, N'-meta-ジカルバゾロイルベンゼン (mCP) の化学構造を示す図である。

【図19】8% FPt (標識「Me」) 及び20% FPt 2 (標識「iPr」) で別々にドーブしたCBPフィルムのフォトルミネセンススペクトルを示す図である。幅広の凝集

体発光を示す8%FPtでドーブしたCBPと対比して、FPt2錯体のより大きい立体構造の嵩が、CBP中の凝集体の形成を阻止している。

【図20】mCP薄膜中にドーブしたFPtの濃度の変化に対するフォトルミネセンススペクトルを示す図である。スペクトルは、マトリックス材の励起極大点(mCPに対しては300nm)でフィルムを励起することによって測定した。

【図21】ホスト分子CBP及びmCPのエネルギーを最小にした構造を示す図である。分子のモデル化及びエネルギーの最小化は、米国カリフォルニア州アーヴァイン92612のWavefunction IncのMacSpartan Pro v1.02ソフトウェアパッケージを用いてPM3レベルで行った。

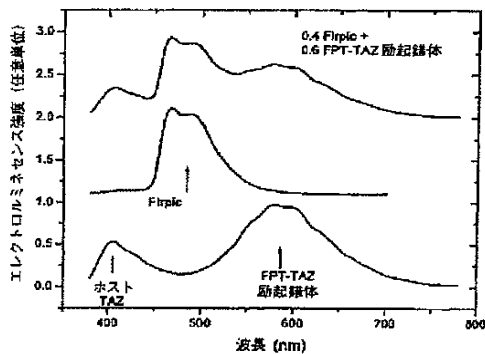
【図22】選択した材料のHOMO準位及びLUMO準位を描くエネルギー準位を示す線図である。各軌道のエネルギーが、あてはまる棒の下(HOMO)又は上(LUMO)に列挙されている。発光ドーパントFPtに対するHOMO準位及びLUMO準位が、各プロットに点線で示してある。ドーブした発光層(CBP又はmCP)は、括弧で囲んである。各素子は、CBP又はmCPのいずれかを有しており両方ではない。上部のプロットは、4層のOLED(電子障壁層はない)を示し、下部のプロットは、IrppzEBLを用いる同様のOLEDを示す。

【図23】mCPに基づくWOLED(ITO/NPD(400Å)/Irppz(200Å)/mCP:FPt(ドーピング濃度16%、300Å)/BCP(150Å)/Alq3(200Å)/LiF-Al)の素子特性を示す図である。IrppzEBLを含むOLED素子の略図が、プロット上部の挿入図として示されている。スペクトル及びCIE座標(挿入図)が、上部プロットに示されている。

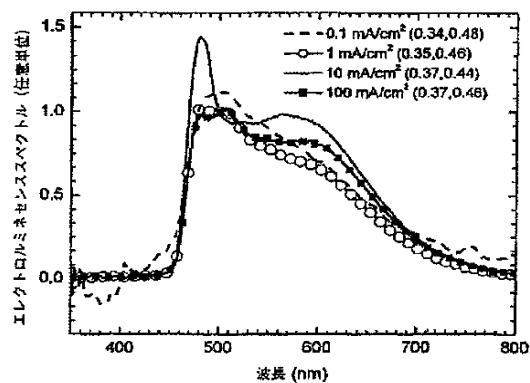
【図24】図23に描かれている素子の量子効率対電流密度の特性及び電流-電圧特性(挿入図)を示す図である。

【図25】図23に描かれているWOLED及びIrppzEBLを含まない関連構造についてのワット当たりのルーメン及び明度対電流密度のプロットを示す図である。

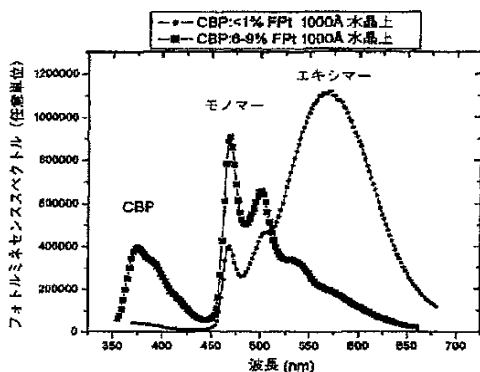
【図1】



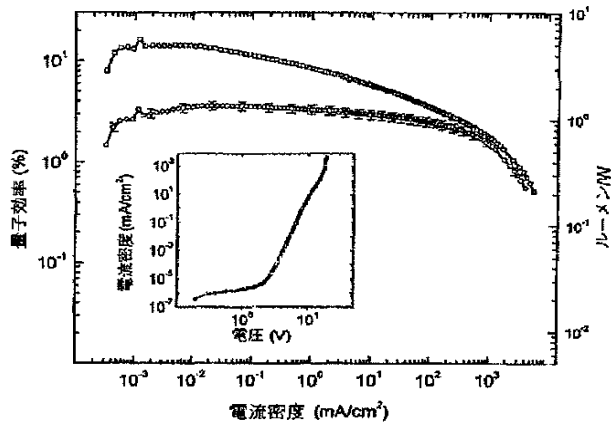
【図3】



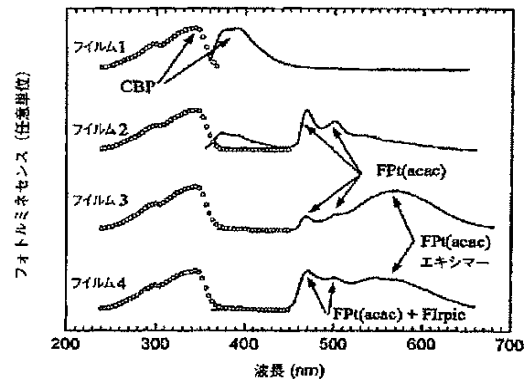
【図2】



【 図 4 】

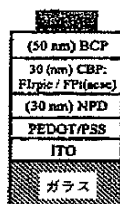
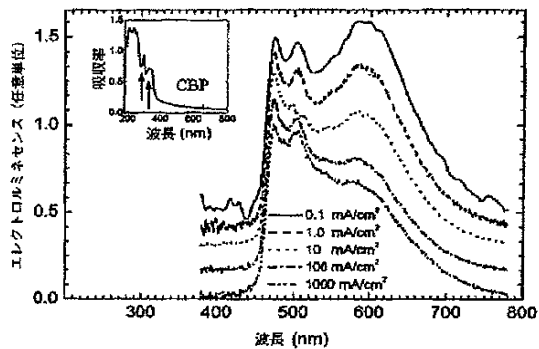


【 図 5 】

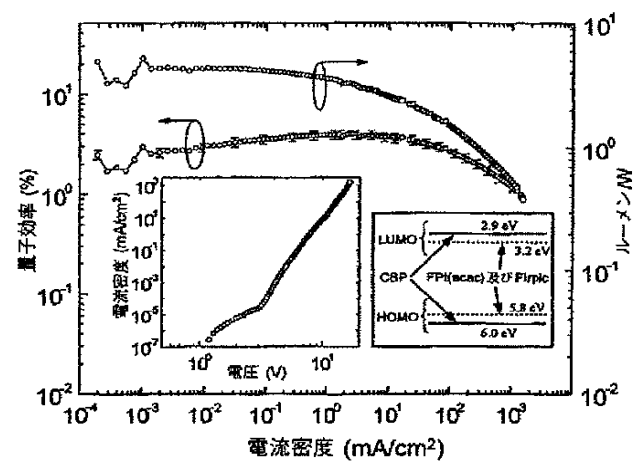


| フィルム | ホスト | ドーパント1           | ドーパント2       | CIE          |
|------|-----|------------------|--------------|--------------|
| 1    | CBP | -                | -            | (0.16, 0.04) |
| 2    | CBP | <1 wt% FPr(acac) | -            | (0.22, 0.35) |
| 3    | CBP | ~7 wt% FPr(acac) | -            | (0.42, 0.50) |
| 4    | CBP | 6 wt% FPr(acac)  | 6 wt% FIrpic | (0.33, 0.44) |

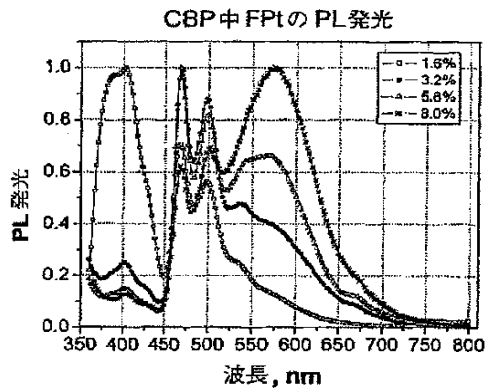
【 図 6 】



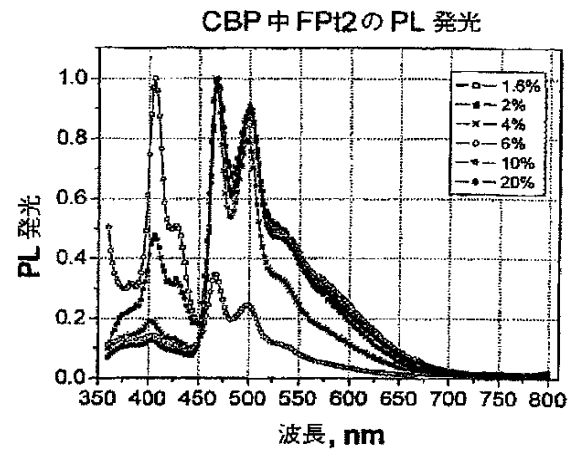
【 図 7 】



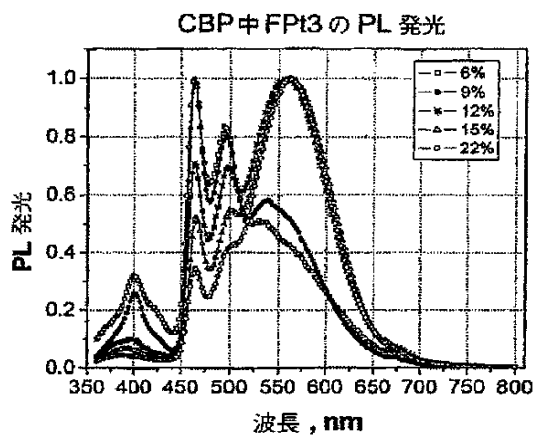
【 図 8 】



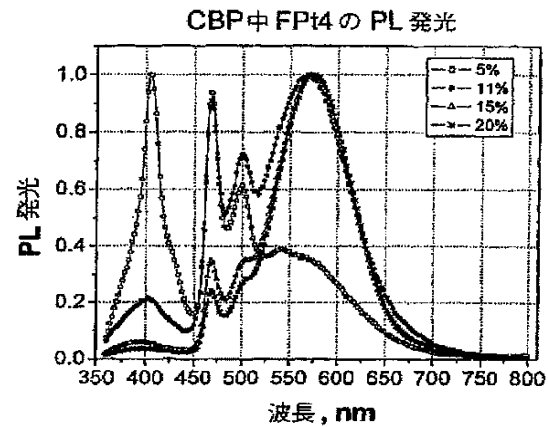
【 図 9 】



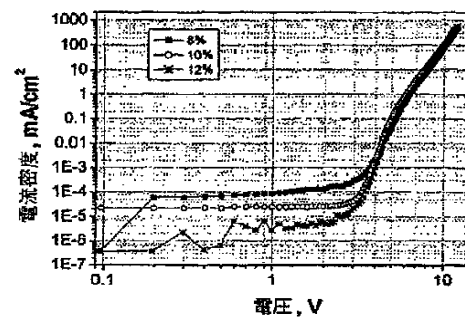
【 図 1 0 】



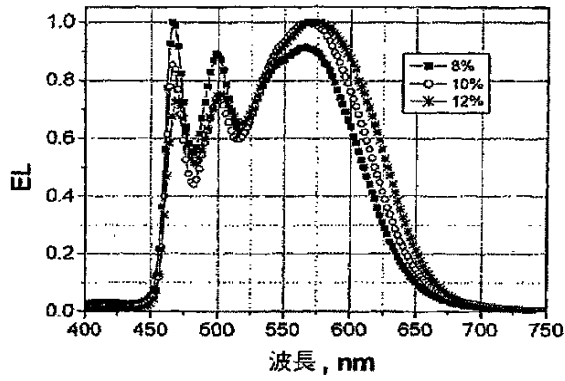
【 図 1 1 】



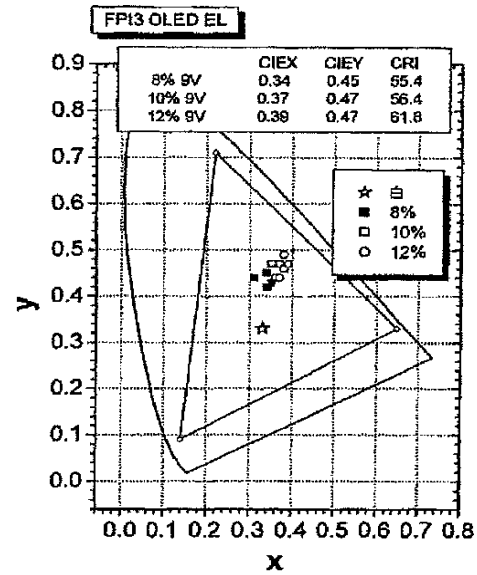
【 図 1 2 】



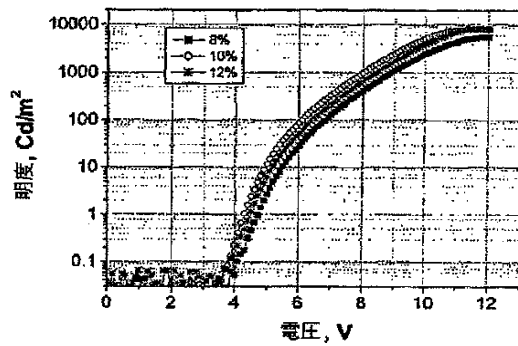
【 図 1 3 】



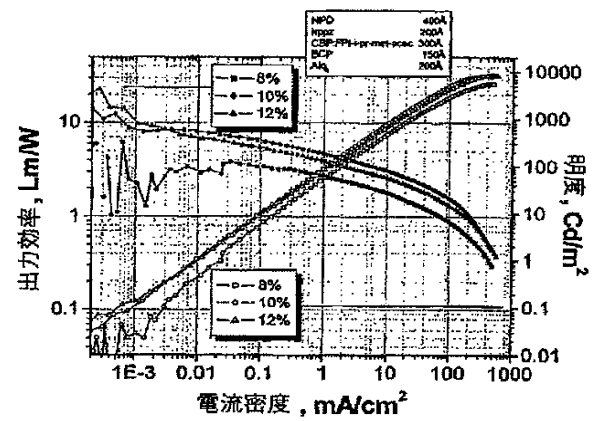
【 図 1 4 】



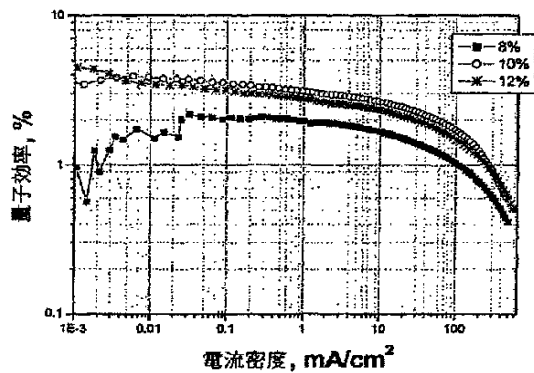
【 図 1 5 】



【 図 1 7 】



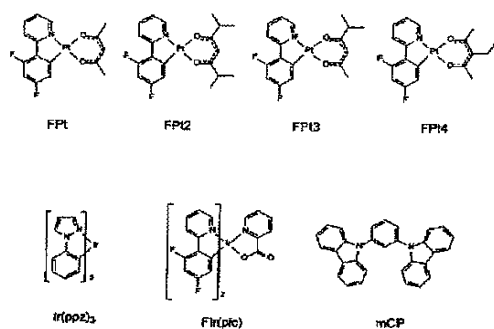
【 図 1 6 】





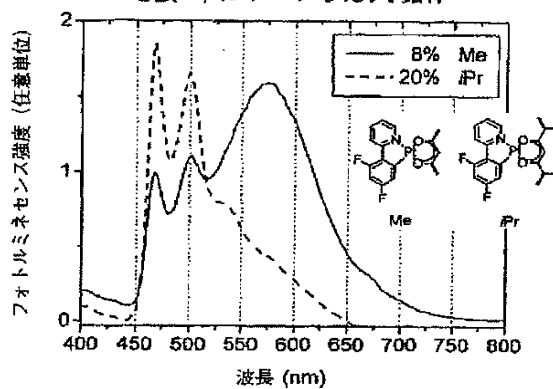
【 図 1 8 】

Figure 18

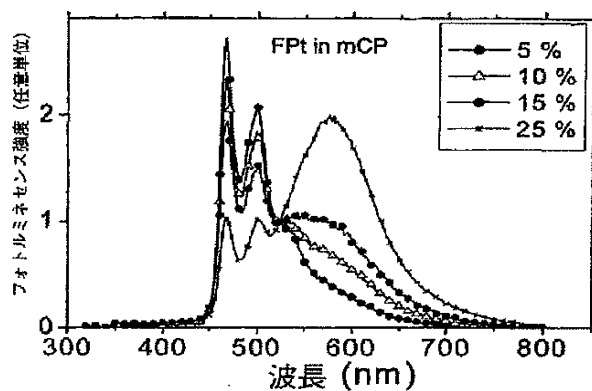


【 図 1 9 】

CBP中にドーピングしたPt 錯体



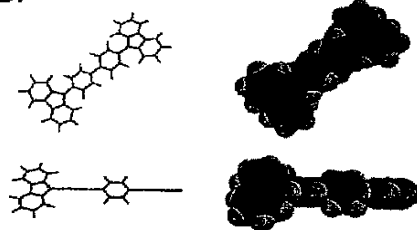
【 図 2 0 】



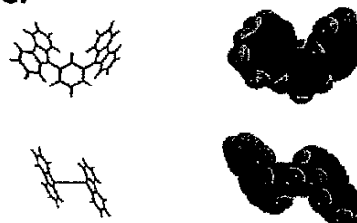
【 図 2 1 】

Figure 21

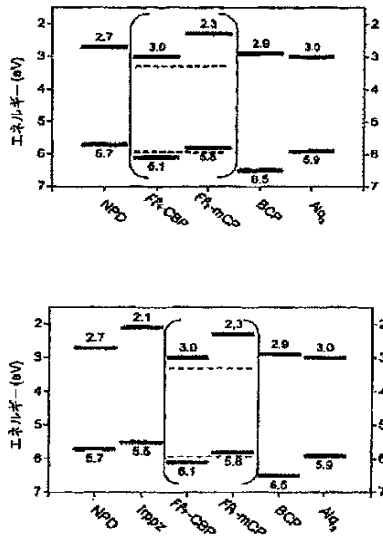
CBP



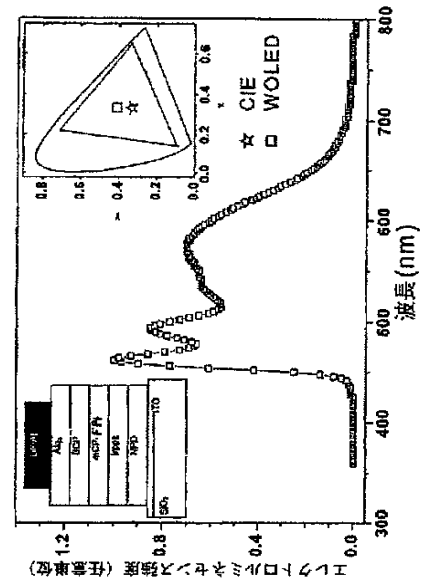
mCP



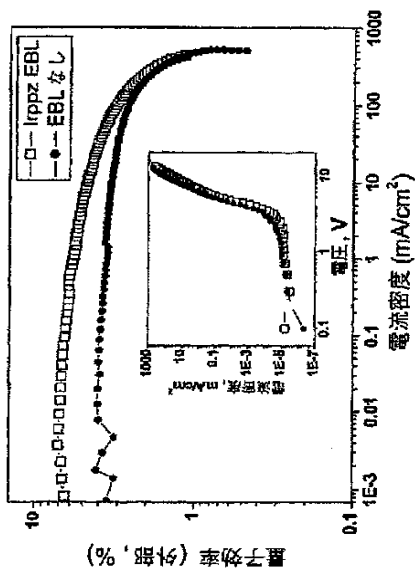
【 図 2 2 】



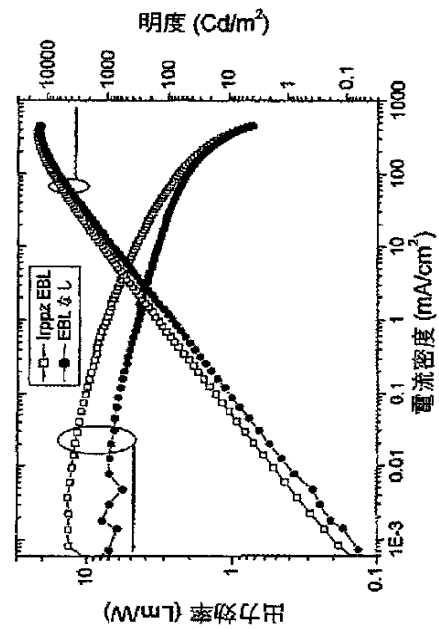
【 図 2 3 】



【 図 2 4 】



【 図 2 5 】



【手続補正書】

【提出日】平成16年6月29日(2004.6.29)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

発光層を含む有機発光素子であって、前記発光層が、  
凝集体発光材料、及び  
モノマー発光材料

を含み、前記凝集体発光材料及び／又は前記モノマー発光材料が、りん光により発光し、前記凝集体発光材料からの発光が、前記モノマー発光材料からの発光よりエネルギーが低く、かつ前記凝集体発光材料と前記モノマー発光材料の複合発光が、可視スペクトルを十分に包含して白色発光をもたらす素子。

【請求項2】

前記凝集体発光材料が、エキシマーである請求項1に記載の素子。

【請求項3】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光により発光する請求項1に記載の素子。

【請求項4】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、同一の化合物からなる請求項3に記載の素子。

【請求項5】

前記モノマー発光材料及び凝集体発光材料が、りん光を発する有機金属化合物である請求項3に記載の素子。

【請求項6】

前記凝集体発光材料が、FPt(acac)を含み、前記モノマー発光材料が、FIr(pic)を含む請求項5に記載の素子。

【請求項7】

前記複合発光が、少なくとも約80の演色評価数を有する請求項1に記載の素子。

【請求項8】

前記複合発光が、約0.30から約0.40のCIE<sub>x</sub>座標及び約0.30から約0.45のCIE<sub>y</sub>座標を有する請求項1に記載の素子。

【請求項9】

前記発光層が、励起錯体発光材料及びモノマー発光材料を含む請求項1に記載の素子。

【請求項10】

前記励起錯体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光により発光する請求項9に記載の素子。

【請求項11】

前記モノマー発光材料及び励起錯体発光材料が、りん光を発する有機金属化合物である請求項10に記載の素子。

【請求項12】

前記発光層が、ポリマーマトリックスをさらに含む請求項1に記載の素子。

【請求項13】

前記ポリマーマトリックスが、PVKである請求項12に記載の素子。

【請求項14】

陽極、  
正孔輸送層、

電子輸送層、及び

陰極

を備えた有機発光素子であって、前記正孔輸送層又は前記電子輸送層が、発光層であり、前記発光層が、凝集体発光材料及びモノマー発光材料を含み、前記凝集体発光材料及び／又は前記モノマー発光材料が、りん光により発光し、前記凝集体発光材料からの発光が、前記モノマー発光材料からの発光よりエネルギーが低く、かつ前記凝集体発光材料と前記モノマー発光材料の複合発光が、可視スペクトルを十分に包含する白色発光をもたらす素子。

【請求項 15】

前記正孔輸送層が、発光層である請求項 14 に記載の素子。

【請求項 16】

前記電子輸送層が、発光層である請求項 14 に記載の素子。

【請求項 17】

前記凝集体発光材料が、エキシマーである請求項 14 に記載の素子。

【請求項 18】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光により発光する請求項 14 に記載の素子。

【請求項 19】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、同一の化合物からなる請求項 18 に記載の素子。

【請求項 20】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光を発する有機金属化合物である請求項 18 に記載の素子。

【請求項 21】

前記凝集体発光材料が、F P t ( a c a c ) を含み、前記モノマー発光材料が、F I r ( p i c ) を含む請求項 20 に記載の素子。

【請求項 22】

前記複合発光が、少なくとも約 80 の演色評価数を有する請求項 14 に記載の素子。

【請求項 23】

前記複合発光が、約 0.30 から約 0.40 の C I E x 座標及び約 0.30 から約 0.45 の C I E y 座標を有する請求項 14 に記載の素子。

【請求項 24】

前記発光層が、励起錯体発光材料及びモノマー発光材料を含む請求項 14 に記載の素子。

【請求項 25】

前記励起錯体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光により発光する請求項 24 に記載の素子。

【請求項 26】

前記モノマー発光材料及び励起錯体発光材料が、りん光を発する有機金属化合物である請求項 24 に記載の素子。

【請求項 27】

前記発光層が、ポリマーマトリックスをさらに含む請求項 14 に記載の素子。

【請求項 28】

前記ポリマーマトリックスが、P V K である請求項 27 に記載の素子。

【請求項 29】

前記素子が、励起子障壁層をさらに含む請求項 14 に記載の素子。

【請求項 30】

前記素子が、正孔注入層をさらに含む請求項 14 に記載の素子。

【請求項 31】

陽極、

正孔輸送層、  
発光層、  
電子輸送層、及び  
陰極

を備えた有機発光素子であって、前記発光層が、凝集体発光材料及びモノマー発光材料を含み、前記凝集体発光材料及び／又は前記モノマー発光材料が、りん光により発光し、前記凝集体発光材料からの発光が、前記モノマー発光材料からの発光よりエネルギーが低く、かつ前記凝集体発光材料と前記モノマー発光材料の複合発光が、可視スペクトルを十分に包含する白色発光をもたらす素子。

【請求項 3 2】

前記発光層が、エキシマー発光材料及びモノマー発光材料を含む請求項 3 1 に記載の素子。

【請求項 3 3】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光により発光する請求項 3 1 に記載の素子。

【請求項 3 4】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、同一の化合物からなる請求項 3 3 に記載の素子。

【請求項 3 5】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光を発する有機金属化合物である請求項 3 3 に記載の素子。

【請求項 3 6】

前記凝集体発光材料が、F P t ( a c a c ) を含み、前記モノマー発光材料が、F I r ( p i c ) を含む請求項 3 5 に記載の素子。

【請求項 3 7】

前記複合発光が、少なくとも約 8 0 の演色評価数を有する請求項 3 1 に記載の素子。

【請求項 3 8】

前記複合発光が、約 0 . 3 0 から約 0 . 4 0 の C I E x 座標及び約 0 . 3 0 から約 0 . 4 5 の C I E y 座標を有する請求項 3 1 に記載の素子。

【請求項 3 9】

前記凝集体発光材料が、励起錯体である請求項 3 1 に記載の素子。

【請求項 4 0】

前記励起錯体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光により発光する請求項 3 9 に記載の素子。

【請求項 4 1】

前記モノマー発光材料及び励起錯体発光材料が、りん光を発する有機金属化合物である請求項 4 0 に記載の素子。

【請求項 4 2】

前記発光層が、ポリマーマトリックスをさらに含む請求項 3 1 に記載の素子。

【請求項 4 3】

前記ポリマーマトリックスが、P V K である請求項 4 2 に記載の素子。

【請求項 4 4】

前記素子が、励起子障壁層をさらに含む請求項 3 1 に記載の素子。

【請求項 4 5】

請求項 1 に記載の素子を組み込んだ光源。

【請求項 4 6】

発光層を含む有機発光素子であって、前記発光層が、  
凝集体発光材料、及び  
モノマー発光材料

を含み、前記発光層が単一の層からなり、前記凝集体発光材料及び／又は前記モノマー

発光材料が、りん光により発光し、前記凝集体発光材料からの発光が、前記モノマー発光材料からの発光よりエネルギーが低く、かつ前記凝集体発光材料と前記モノマー発光材料の複合発光が、可視スペクトルを十分に包含する白色発光をもたらす素子。

【請求項 47】

前記凝集体発光材料が、エキシマーである請求項 46 に記載の素子。

【請求項 48】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光により発光する請求項 46 に記載の素子。

【請求項 49】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、同一の化合物からなる請求項 48 に記載の素子。

【請求項 50】

前記モノマー発光材料及び凝集体発光材料が、りん光を発する有機金属化合物である請求項 48 に記載の素子。

【請求項 51】

前記凝集体発光材料が、F P t ( a c a c ) を含み、前記モノマー発光材料が、F I r ( p i c ) を含む請求項 50 に記載の素子。

【請求項 52】

前記複合発光が、少なくとも約 80 の演色評価数を有する請求項 46 に記載の素子。

【請求項 53】

前記複合発光が、約 0.30 から約 0.40 の C I E x 座標及び約 0.30 から約 0.45 の C I E y 座標を有する請求項 46 に記載の素子。

【請求項 54】

前記発光層が、励起錯体発光材料及びモノマー発光材料を含む請求項 46 に記載の素子。

【請求項 55】

前記励起錯体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光により発光する請求項 54 に記載の素子。

【請求項 56】

前記モノマー発光材料及び励起錯体発光材料が、りん光を発する有機金属化合物である請求項 55 に記載の素子。

【請求項 57】

前記発光層が、ポリマーマトリックスをさらに含む請求項 46 に記載の素子。

【請求項 58】

前記ポリマーマトリックスが、P V K である請求項 57 に記載の素子。

【請求項 59】

発光層を含む有機発光素子であって、前記発光層が、  
エキシマー発光材料、及び  
モノマー発光材料

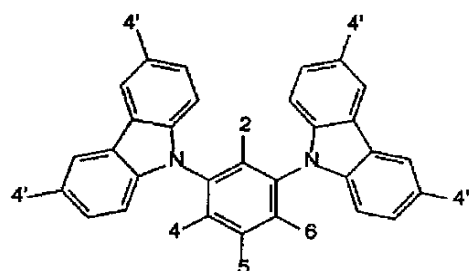
を含み、前記発光層が単一の層からなり、前記エキシマー発光材料からの発光が、前記モノマー発光材料からの発光よりエネルギーが低く、かつ前記エキシマー発光材料と前記モノマー発光材料の複合発光が、可視スペクトルを十分に包含する白色発光をもたらす素子。

【請求項 60】

発光層を含む有機発光素子であって、前記発光層が、  
凝集体発光材料、  
モノマー発光材料、及び

式 1

【化 1】



(I)

(式中、2、4、5、6、及び各4'の位置の置換基は、独立して水素、フェニル、又はポリフェニルから選ばれる)の化合物を含むマトリックス材料、

を含み、前記凝集体発光材料からの発光が、前記モノマー発光材料からの発光よりエネルギーが低く、かつ前記凝集体発光材料と前記モノマー発光材料の複合発光が、可視スペクトルを十分に包含する白色発光をもたらす素子。

【請求項61】

前記凝集体発光材料が、エキシマーである請求項60に記載の素子。

【請求項62】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光により発光する請求項60に記載の素子。

【請求項63】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、同一の化合物からなる請求項62に記載の素子。

【請求項64】

前記モノマー発光材料及び凝集体発光材料が、りん光を発する有機金属化合物である請求項62に記載の素子。

【請求項65】

前記複合発光が、少なくとも約80の演色評価数を有する請求項60に記載の素子。

【請求項66】

前記複合発光が、約0.30から約0.40のCIEx座標及び約0.30から約0.45のCIEy座標を有する請求項60に記載の素子。

【請求項67】

前記発光層が、励起錯体発光材料及びモノマー発光材料を含む請求項60に記載の素子。

【請求項68】

前記励起錯体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光により発光する請求項67に記載の素子。

【請求項69】

前記モノマー発光材料及び励起錯体発光材料が、りん光を発する有機金属化合物である請求項68に記載の素子。

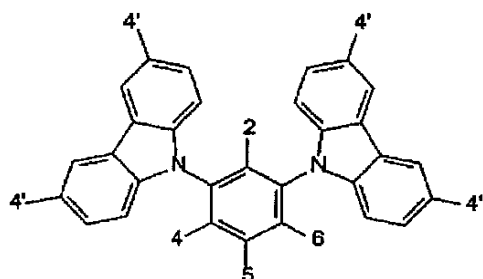
【請求項70】

陽極、

正孔輸送層、

凝集体発光材料、モノマー発光材料、及び式1

【化 2】



(I)

（式中、2、4、5、6、及び各4'の位置の置換基は、独立して水素、フェニル、又はポリフェニルから選ばれる）の化合物を含むマトリックス材料を含む発光層、

電子輸送層、及び  
陰極

を備えた有機発光素子であって、前記凝集体発光材料からの発光が、前記モノマー発光材料からの発光よりエネルギーが低く、かつ前記凝集体発光材料と前記モノマー発光材料の複合発光が、可視スペクトルを十分に包含する白色発光をもたらす素子。

【請求項 7 1】

前記発光層が、エキシマー発光材料及びモノマー発光材料を含む請求項 7 0 に記載の素子。

【請求項 7 2】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光により発光する請求項 7 0 に記載の素子。

【請求項 7 3】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、同一の化合物からなる請求項 7 2 に記載の素子。

【請求項 7 4】

前記凝集体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光を発する有機金属化合物である請求項 7 2 に記載の素子。

【請求項 7 5】

前記複合発光が、少なくとも約 8 0 の演色評価数を有する請求項 7 0 に記載の素子。

【請求項 7 6】

前記複合発光が、約 0.30 から約 0.40 の C I E x 座標及び約 0.30 から約 0.45 の C I E y 座標を有する請求項 7 0 に記載の素子。

【請求項 7 7】

前記凝集体発光材料が、励起錯体である請求項 7 0 に記載の素子。

【請求項 7 8】

前記励起錯体発光材料及び前記モノマー発光材料が、りん光により発光する請求項 7 7 に記載の素子。

【請求項 7 9】

前記モノマー発光材料及び励起錯体発光材料が、りん光を発する有機金属化合物である請求項 7 8 に記載の素子。

【請求項 8 0】

前記素子が、さらに励起子障壁層を含む請求項 7 0 に記載の素子。

【請求項 8 1】

前記励起子障壁層が、前記正孔輸送層と前記発光層の間に位置している請求項 8 0 に記載の素子。

【請求項 8 2】

前記励起子障壁層が、f a c -イリジウム ( I I I ) トリス ( 1 -フェニルピラゾラト

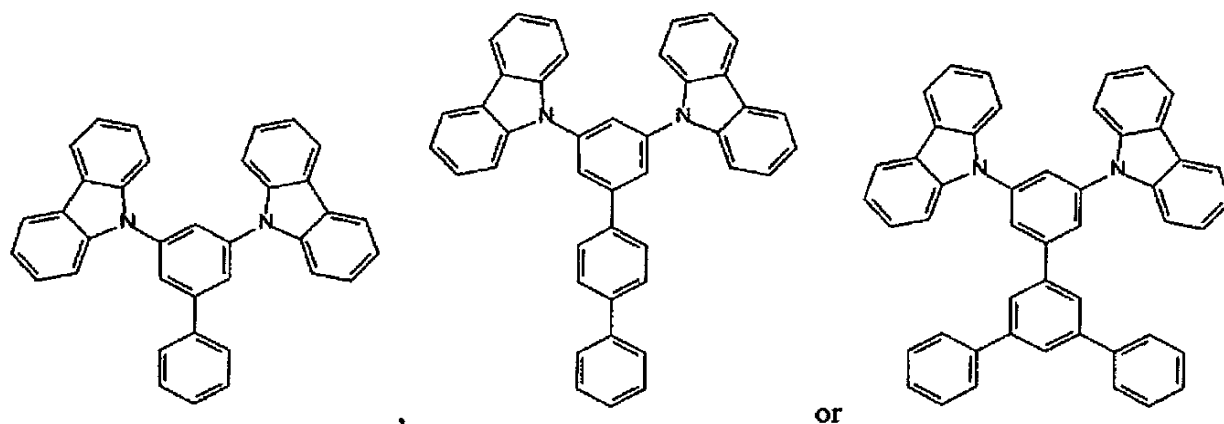


- N, C<sup>2+</sup> ) を含む請求項 81 に記載の素子。

【請求項 83】

前記マトリックス材料が、式

【化 3】



の化合物を含む請求項 60 に記載の素子。

【請求項 84】

前記マトリックス材料が、mCPを含む請求項 60 に記載の素子。

【請求項 85】

前記マトリックス材料が、式の化合物を含む請求項 70 に記載の素子。

## 【 国際調査報告 】

| INTERNATIONAL SEARCH REPORT   |  | International application No.<br>PCT/US02/41578                          |  |  |                       |   |   |                       |   |  |                                |      |   |   |      |  |      |
|---|--|--|--|--|-----------------------|---|---|-----------------------|---|--|--------------------------------|------|---|---|------|--|------|
| <b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b><br>IPC(7) : H05B 33/14; C09K 11/06<br>US CL : 428/690, 917; 313/504, 506; 257/102, 103; 252/301.16, 301.35<br>According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC  |  |  |  |  |                       |   |   |                       |   |  |                                |      |   |   |      |  |      |
| <b>B. FIELDS SEARCHED</b><br>Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)<br>U.S. : 428/690, 917; 313/504, 506; 257/102, 103; 252/301.16, 301.35<br>Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched<br>NONE<br>Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)<br>Please See Continuation Sheet   |  |  |  |  |                       |   |   |                       |   |  |                                |      |   |   |      |  |      |
| <b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b> <table border="1"> <thead> <tr> <th>Category *</th> <th>Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages</th> <th>Relevant to claim No.</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>KIDO et al. Single-layer white light-emitting organic electroluminescent devices based on dye-dispersed poly(N-vinylcarbazole). Appl. Phys. Lett. 16 October 1995. Vol 67, No. 16, pages 2281-2285, especially p. 2282, first column.</td> <td>1, 7-9, 12, 13 and 45</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td></td> <td>10, 11, 14-16, 22-31 and 37-44</td> </tr> <tr> <td>P, Y</td> <td>US 2002/0025419 A1 (LEE et al) 28 February 2002 (28.02.2002), see the whole document, especially paragraphs [0003]-[0008] and [0023].</td> <td>1-5, 7, 8, 12-20, 22, 23, 27-35, 37, 38 and 42-45</td> </tr> <tr> <td>P, Y</td> <td>US 2002/0071963 A1 (FUJII) 13 June 2002 (13.06.2002), see the whole document, especially paragraphs [0156]-[0167].</td> <td>1-45</td> </tr> </tbody> </table>   |  |  | Category *   | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages   | Relevant to claim No. | X | KIDO et al. Single-layer white light-emitting organic electroluminescent devices based on dye-dispersed poly(N-vinylcarbazole). Appl. Phys. Lett. 16 October 1995. Vol 67, No. 16, pages 2281-2285, especially p. 2282, first column. | 1, 7-9, 12, 13 and 45 | Y |  | 10, 11, 14-16, 22-31 and 37-44 | P, Y | US 2002/0025419 A1 (LEE et al) 28 February 2002 (28.02.2002), see the whole document, especially paragraphs [0003]-[0008] and [0023]. | 1-5, 7, 8, 12-20, 22, 23, 27-35, 37, 38 and 42-45 | P, Y | US 2002/0071963 A1 (FUJII) 13 June 2002 (13.06.2002), see the whole document, especially paragraphs [0156]-[0167]. | 1-45 |
| Category *  | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages   | Relevant to claim No.  |  |  |                       |   |   |                       |   |  |                                |      |   |   |      |  |      |
| X   | KIDO et al. Single-layer white light-emitting organic electroluminescent devices based on dye-dispersed poly(N-vinylcarbazole). Appl. Phys. Lett. 16 October 1995. Vol 67, No. 16, pages 2281-2285, especially p. 2282, first column.  | 1, 7-9, 12, 13 and 45  |  |  |                       |   |   |                       |   |  |                                |      |   |   |      |  |      |
| Y   |  | 10, 11, 14-16, 22-31 and 37-44   |  |  |                       |   |   |                       |   |  |                                |      |   |   |      |  |      |
| P, Y  | US 2002/0025419 A1 (LEE et al) 28 February 2002 (28.02.2002), see the whole document, especially paragraphs [0003]-[0008] and [0023].  | 1-5, 7, 8, 12-20, 22, 23, 27-35, 37, 38 and 42-45                        |  |  |                       |   |   |                       |   |  |                                |      |   |   |      |  |      |
| P, Y  | US 2002/0071963 A1 (FUJII) 13 June 2002 (13.06.2002), see the whole document, especially paragraphs [0156]-[0167].   | 1-45   |  |  |                       |   |   |                       |   |  |                                |      |   |   |      |  |      |
| <input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.   |  |  |  |  |                       |   |   |                       |   |  |                                |      |   |   |      |  |      |
| Special categories of cited documents: <table border="0"> <tr> <td style="vertical-align: top;">           "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance<br/>           "E" earlier application or patent published on or after the international filing date<br/>           "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)<br/>           "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means<br/>           "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed         </td> <td style="vertical-align: top;">           "X" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention<br/>           "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone<br/>           "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art<br/>           "A" document member of the same patent family         </td> </tr> </table> |  |  | "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance<br>"E" earlier application or patent published on or after the international filing date<br>"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)<br>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means<br>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed | "X" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention<br>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone<br>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art<br>"A" document member of the same patent family |                       |   |   |                       |   |  |                                |      |   |   |      |  |      |
| "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance<br>"E" earlier application or patent published on or after the international filing date<br>"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)<br>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means<br>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed  | "X" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention<br>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone<br>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art<br>"A" document member of the same patent family |  |  |  |                       |   |   |                       |   |  |                                |      |   |   |      |  |      |
| Date of the actual completion of the international search<br>(3 March 2003 (13.03.2003))  |  | Date of mailing of the international search report<br>27 MAR 2003        |  |  |                       |   |   |                       |   |  |                                |      |   |   |      |  |      |
| Name and mailing address of the ISA/US<br>Commissioner of Patents and Trademarks<br>Box PCT<br>Washington, D.C. 20231<br>Facsimile No. (703) 305-3230   |  | Authorized officer<br>Marie U. Yamnitzky<br>Telephone No. (703) 308-0661 |  |  |                       |   |   |                       |   |  |                                |      |   |   |      |  |      |

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

PCT/US02/41578

## Continuation of B. FIELDS SEARCHED Item 3:

Applied Physics Letters

search terms: white, light, emission, emitting, phosphores, triplet, organic, polymer, electrolumines

EAST/USPAT, US-PGPUB

search terms: white, light, emission, excimer, exciplex, aggregate, phosphores\$5, triplet, electrophosphores\$5

## フロントページの続き

(81) 指定国 AP (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SI, SK, TR), OA (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW

(74) 代理人 100107504

弁理士 安藤 克則

(74) 代理人 100109265

弁理士 小池 誠

(72) 発明者 トンプソン、マーク、イー.

アメリカ合衆国、カリフォルニア、アナハイム、 ペッパー クリーク ウェイ 4447

(72) 発明者 ブルックス、ジェーソン

アメリカ合衆国、カリフォルニア、ロサンゼルス、 ドロシー ストリート 11908 ナンバー108

(72) 発明者 アダモヴィチ、ヴァディム

アメリカ合衆国、カリフォルニア、ロサンゼルス、 ダブリュ. サーティエス ストリート 1103、アパートメント 6

(72) 発明者 フォレスト、スティーブン、アール.

アメリカ合衆国、ニュージャージー、プリンストン、 ハント ドライブ 148

(72) 発明者 ダンドラデ、ブライアン

アメリカ合衆国、ニュージャージー、プリンストン、 ファクリイティ ロード、5キュー ハイベン

Fターム(参考) 3K007 AB03 AB04 DB03